



Titre: Développement d'un moule pour mesurer les conductivités
thermiques d'un matériau composite par analyse inverse

Auteur: Bassam Assaf
Author:

Date: 2004

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Assaf, B. (2004). Développement d'un moule pour mesurer les conductivités
thermiques d'un matériau composite par analyse inverse [Master's thesis, École
Citation: Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7444/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/7444/>
PolyPublie URL:

**Directeurs de
recherche:**
Advisors:

Programme: Unspecified
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DEVELOPPEMENT D'UN MOULE POUR MESURER LES CONDUCTIVITES
THERMIQUE D'UN MATERIAU COMPOSITE PAR ANALYSE INVERSE

BASSAM ASSAF

DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION DU
DIPLOME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE MÉCANIQUE)

AOÛT 2004



Library and
Archives Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Published Heritage
Branch

Direction du
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

ISBN: 0-612-97920-2

Our file Notre référence

ISBN: 0-612-97920-2

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

DEVELOPPEMENT D'UN MOULE POUR MESURER LES CONDUCTIVITES
THERMIQUE D'UN MATERIAU COMPOSITE PAR ANALYSE INVERSE

présenté par : ASSAF Bassam

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. DETUNCQ Bruno, Ph. D., président

M. TROCHU François, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. NGUYEN T. Hung, Ph. D., membre

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au Centre de recherche appliquée sur les polymères de l'École Polytechnique de Montréal. Je remercie vivement et j'exprime ma gratitude au Professeur François Trochu qui m'a permis d'effectuer ce travail au sein du CRASP et de m'avoir confié la réalisation de cette étude sous sa responsabilité. Je lui adresse aussi mes plus sincères remerciements pour l'intérêt qu'il a porté à mes recherches.

Je tiens à remercier Docteur Sofiane Soukane pour son aide précieuse et les informations qu'ils m'a apportées pour la réalisation de ce travail ainsi que pour les nombreuses et fructueuses discussions que nous avons eues tout au long de ce travail.

Mes remerciements vont également au Réseau de centres d'excellence Auto 21 et la Compagnie Ford Motor pour leur support financier ainsi que le Conseil de recherches en sciences naturelles et en génie du Canada (NSERC) et Fonds québécois de recherche sur la nature et la technologie (FQRNT) pour le développement du moule.

Que toutes les personnes que j'ai côtoyais pendant ce travail trouvent ici l'expression de mes sentiments les plus sincères pour leur accueil chaleureux.

RÉSUMÉ

Le but de cette recherche est d'établir une méthodologie basée sur l'analyse thermique inverse pour mesurer les conductivités thermiques transversale et longitudinale d'un matériau composite cru et cuit en fonction de la température et du degré de cuisson. Un moule multifonctionnel a été conçu pour produire des plaques composites par le procédé RTM et pour permettre d'effectuer les expériences nécessaires pour mesurer la conductivité thermique. Dans cette étude, une revue bibliographique des méthodes employées pour mesurer des conductivités thermiques est présentée. Une analyse thermique du moule à travers des simulations numériques a été effectuée pour déterminer les dimensions appropriées aussi bien que le positionnement des capteurs de pression utilisés pour contrôler le procédé d'injection. La conception finale du moule permet de mesurer la température du matériau composite à l'aide des thermocouples soigneusement insérés dans la cavité. Une série de simulations numériques a été également effectuée pour choisir la meilleure configuration de système de chauffage permettant l'identification de la conductivité thermique longitudinale. Les valeurs des conductivités thermiques ont été comparées aux modèles analytiques et ont montré une très bonne concordance.

ABSTRACT

The goal of this investigation is to devise an accurate method based on inverse thermal analysis to measure the transverse and the in-plane thermal conductivities of a raw and cured composite as a function of temperature and degree of cure. A new multi-functional mold was designed to produce composite test plates by RTM and perform the experiments required to measure thermal conductivity. In the present work a bibliographical review of the methods used to measure thermal conductivities is presented. A thermal analysis of the mold using numerical simulations was carried out to determine the appropriate dimensions as well as the positioning of the pressure sensors needed to control the injection process. The final design allows measuring the temperature of the composite material of interest using thermocouples carefully inserted into the mold cavity. A series of numerical simulations was also performed to set the best heating configuration that allows the identification of the in-plane thermal conductivity using the inverse method. The thermal conductivities predicted values were compared to the results of analytical models and show a very good agreement.

TABLE DES MATIÈRES

Remerciements.....	iv
Résumé.....	v
Abstract.....	vi
Table des matières.....	vii
Liste des tableaux.....	x
Liste des figures.....	xi
Liste des annexes.....	xv
Liste des sigles et d'abréviations.....	xvi
 Introduction.....	 1
 Chapitre 1 : Revue Bibliographique.....	 4
1.1 Introduction.....	4
1.2 Transfert par moulage de résine (RTM).....	5
1.3 Modélisation thermique	6
1.4 Paramètres cinétiques.....	11
1.5 Modélisation de la conductivité thermique	16
1.5.1 Approximation homogène.....	16
1.5.2 Modélisation de la conductivité thermique transverse.....	17
1.5.3 Modélisation de la conductivité thermique longitudinale.....	18
1.5.4 Validation des modèles	18
1.6 Méthodes de détermination de la conductivité thermique	19
1.6.1 Méthodes en régime permanent	20
1.6.2 Méthodes en régime transitoire.....	22
1.6.3 Méthodes inverses.....	23
1.7 Conclusion	24

Chapitre 2 : Présentation du memoire et des objectifs de la recherche.....	25
2.1 Introduction.....	25
2.2 Présentation du chapitre 3	26
2.3 Présentation du chapitre 4	29
2.4 Conclusion.....	30
 Chapitre 3 : Development of a Characterization Mold to Measure the Transverse Thermal Conductivity of a Composite Material by Inverse Analysis.....	31
3.1 Abstract	31
3.2 Introduction	32
3.3 Experimental mold.....	34
3.3.1 Design of the characterization mold	35
3.3.2 Cavity control.....	36
3.3.3 Pressure monitoring	36
3.4 Inverse method.....	36
3.4.1 Solving the direct problem	37
3.5 Thermal analysis of the mold.....	39
3.5.1 Two-dimensional simulation results.....	40
3.5.2 Three-dimensional simulation results.....	41
3.5.3 Description of the mold.....	41
3.6 Experimental set-up	42
3.6.1 The injection system.....	42
3.6.2 The heating system.....	42
3.7 Experimental protocol.....	43
3.8 Results and discussion	44
3.9 Conclusion	46
3.10 Acknowledgemets.....	48
3.11 References	48
3.12 List of tables	51
3.13 List of figures.....	52

Chapitre 4 : Development of a Characterization Mold to Measure the In-plane Thermal Conductivity of a Composite Material by Inverse Analysis	62
4.1 Abstract	62
4.2 Introduction	63
4.3 Mold description	65
4.4 Inverse method	66
4.4.1 Solving the direct problem	66
4.5 Heating configurations	68
4.5.1 Configuration 1	68
4.5.2 Configuration 2	69
4.5.3 Configuration 3	70
4.5.4 Configuration 4	70
4.6 Experimental set-up	71
4.6.1 The injection system	71
4.6.2 The heating system	71
4.7 Experimental protocol	72
4.8 Results and discussion	73
4.9 Conclusion	75
4.10 Acknowledgements	76
4.11 References	76
4.12 List of Tables	78
4.13 List of Figures	79
Discussion générale	92
Conclusion	93
Références	95
Annexes	100

LISTE DES TABLEAUX

Table 3.1. Thermophysical properties of materials used by Jauffres [8]51

Table 3.2. Thermophysical properties of materials used for the actual mold52

Table 4.1 Thermophysical properties of materials used in the numerical simulation78

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1:	Procédé RTM	6
Figure 1.2:	Méthode de la plaque chaude gardée	21
Figure 3.1:	Cut view along the vertical planes of symmetry of the mold designed by Jauffres [9]	52
Figure 3.2:	Mesh of the vertical cut view of the mold.....	52
Figure 3.3:	Temperature distribution in the 100×100 mm square mold with a pressure sensor in the middle of the cavity	53
Figure 3.4:	Mold assembly	53
Figure 3.5:	Flow chart of the inverse method.....	54
Figure 3.6:	Mesh of the characterization mold.....	55
Figure 3.7:	Temperature distribution in the mold after 941 sec	55
Figure 3.8:	Temperature differences between sensors located at the same depth	56
Figure 3.9:	Temperature distribution in the mold (horizontal middle section)	56
Figure 3.10:	Temperature distribution in the characterization mold (vertical section)	57

Figure 3.11:	Horizontal temperature distribution at the interface between the composite sample and the characterization mold.....	57
Figure 3.12:	Mold dimensions and positions of the pressure transducers.....	58
Figure 3.13:	Cut view of the characterization mold	58
Figure 3.14:	Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured composite during heating	59
Figure 3.15:	Evolution with temperature of the transverse thermal conductivity of the cured composite	59
Figure 3.16:	Experimental set-up designed to hold thermocouples	60
Figure 3.17:	Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured resin during heating.....	60
Figure 3.18:	Evolution with temperature of the transverse thermal conductivity of the cured resin	61
Figure 3.19:	Comparison between experimental transverse thermal conductivity of the cured composite and the one derived from Springer and Tsai model.....	61
Figure 4.1:	Mold assembly	79
Figure 4.2:	Mold dimensions.....	79
Figure 4.3:	Flow chart of the inverse method.....	80

Figure 4.4:	Rectangular heater in contact with the composite (configuration 1)	81
Figure 4.5:	Mesh of the mold and cavity (configuration 1).....	81
Figure 4.6:	Temperature distribution in the mold after 2500 sec	82
Figure 4.7:	Heater in contact with the length of the composite (configuration 2).....	82
Figure 4.8:	Mesh of the mold (configuration 2)	83
Figure 4.9:	Temperature distribution in the mold after 2500 sec	83
Figure 4.10:	Composite placed between two heaters (configuration 3)	84
Figure 4.11:	Mesh of the mold (configuration 3)	84
Figure 4.12:	Temperature distribution in the mold after 2500 sec	85
Figure 4.13:	Fibers direction.....	85
Figure 4.14:	Sample heated from top and bottom surfaces	86
Figure 4.15:	Mesh of the mold (configuration 4)	86
Figure 4.16:	Temperature distribution in the mold after 2500 sec	87
Figure 4.17:	Cut view of the mold.....	87
Figure 4.18:	Cure and post cure heating cycle	88

Figure 4.19:	Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured composite during heating	88
Figure 4.20:	Evolution with temperature of the in-plane thermal conductivity of the cured composite	89
Figure 4.21:	Experimental set-up designed to hold thermocouples	89
Figure 4.22:	Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured resin during heating.....	90
Figure 4.23:	Evolution with temperature of the thermal conductivity of the cured resin	90
Figure 4.24:	Comparison between experimental in-plane thermal conductivity of the cured composite and the one derived from the rule of mixtures.....	91

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE I	Calcul du taux de fibres.....	100
ANNEXE II	Préparation d'un joint de silicone.....	103
ANNEXE III	Données expérimentales.....	105
ANNEXE VI	Essai avec le laiton.....	110
ANNEXE V	Instrumentation.....	113

LISTE DES SIGLES ET ABREVIATION

B	:	Paramètre de la fonction d'inhibition.
C _p	:	Chaleur spécifique massique du matériau (J/kg.K).
dH	:	Différentiel de la fonction enthalpie (J/kg).
E	:	Énergie d'activation.
F	:	Fonction cinétique (s ⁻¹).
G	:	Fonction cinétique dépendant de l'avancement de la réaction.
J	:	Critère à minimiser.
k	:	Fonction cinétique dépendant de la température (s ⁻¹).
k ₀	:	Constante préexponentielle de la fonction k (s ⁻¹).
m	:	Masse de l'échantillon (kg), coefficient de la loi de Kamal et Sourour.
n	:	Nombre de couches de fibres, coefficient de la loi de Kamal et Sourour.
R	:	Constante des gaz parfaits.
t	:	Temps (s).
t _f	:	Durée de l'expérience (s).
t _{ind}	:	Temps d'induction (s).
t _{réf}	:	Temps de référence de la fonction d'inhibition (s).
T	:	Température (K).
T ₀	:	Température initiale (K).
T _g	:	Température de transition vitreuse (K).
T _{réf}	:	Température de référence (K).

- v_f : Taux volumique de fibres dans le composite.
- w : Fraction massique.

Notations grecques :

- α : Degré d'avancement de la réaction de réticulation (d'un point de vue thermique), défini comme le rapport de l'énergie libérée sur l'énergie totale.
- $d\alpha/dt$: Vitesse de la réaction chimique (s^{-1}).
- ΔH : Variation d'enthalpie (J/kg.K).
- ΔH^r : Enthalpie totale de la réaction chimique (J/kg.K).
- Φ : Proportion de résine en masse dans le composite.
- λ : Conductivité thermique (W/m.K).
- ρ : Masse volumique (kg/m^3).

INTRODUCTION

Le processus du moulage par transfert de résine (RTM) est de plus en plus employé dans les industries aérospatiale et automobile pour fabriquer des pièces composites à haute performance en injectant une résine liquide dans un renfort fibreux souvent placé dans une cavité de moule. L'augmentation du rendement de processus et l'assurance d'une meilleure qualité de pièces produites exigent un bon contrôle des aspects thermiques durant le processus. L'évolution de la température pendant le remplissage ou la cuisson de la résine joue un rôle important dans la définition des caractéristiques des pièces. Il est donc important de comprendre le comportement du matériau composite sous l'influence des charges thermique et d'analyser l'effet de la température sur ses propriétés telles que la chaleur spécifique et la conductivité thermique.

Plusieurs variables thermophysiques, telles que la température, la chaleur spécifique et la viscosité de la résine régissent les phénomènes physiques qui se produisent pendant l'injection. La température affecte l'écoulement de la résine en modifiant sa viscosité. Le transfert thermique pendant l'injection et la cuisson de la résine est en particulier régi par la conductivité thermique qui quant à elle dépend de la température et du degré de cuisson.

En raison de l'importance de la conductivité thermique, plusieurs méthodes empiriques et semi-empiriques ont été développées pour estimer ce paramètre. Les techniques les plus utilisées sont purement empiriques telles que la méthode du fil chaud [1]. Le principe de la mesure est le suivant : un fil métallique fin est placé au cœur du matériau à caractériser. A l'instant pris pour origine, un courant électrique de puissance constante mesurable est délivrée. Simultanément, la variation de la température du fil est relevée, soit par un thermocouple soudé sur le fil (méthode dite du "*croisillon*"), soit directement par la mesure de la résistance du fil. Dans sa forme traditionnelle, l'identification de la

conductivité thermique s'effectue sur une longue période du temps, ce qui justifie l'appellation de régime quasi-établi.

Les méthodes Semi-empiriques peuvent être groupées en trois familles principales dépendamment de l'approche choisie à savoir, les techniques stationnaires, transitoires et inverses. Les techniques stationnaires sont basées sur la méthode de la plaque chaude gardée et sur la loi de Fourier de conduction de la chaleur [2]. À partir de la variation de la température entre les deux faces d'un échantillon, la conductivité thermique peut être directement estimée. Cette méthode fournit des résultats satisfaisants. Cependant, l'équilibre thermique est atteint seulement après une longue période pendant l'expérience. Ceci peut présenter un inconvénient si les propriétés du matériau changent avec la température, ce qui est le cas pendant la cuisson des matières composites.

Les techniques transitoires, telles que la méthode de "sonde de shock" [3,4] et la méthode flash [5] peuvent être employées seulement si les propriétés du matériau ne dépendent pas de la température, sinon seulement une évaluation approximative est obtenue. Ces méthodes sont donc inappropriées pour les composites à haute performance dont les propriétés changent avec la température et le degré de cuisson.

Le but de cette recherche est d'établir une méthode plus précise basée sur l'analyse thermique inverse [6] pour mesurer les conductivités thermiques transverse et longitudinale d'un matériau composite cuit en fonction de la température. Cette approche est validée par des simulations numériques et des séries d'expériences effectuées pour un matériau composite à base d'une résine polyester et des fibres de verre unidirectionnelles.

Ce mémoire est présenté sous forme d'articles. L'étude bibliographique proposée au chapitre 1 a pour objectif de présenter les travaux antérieurs sur les méthodes de caractérisations des conductivités thermiques transverse et longitudinale.

Le chapitre 2 a pour but de présenter les articles soumis aux revues et d'expliquer en détail les expériences qui ont été effectuées et qui n'ont pas été citées dans les articles.

L'objectif du chapitre 3 est d'utiliser la technique d'analyse inverse pour mesurer la conductivité thermique transverse d'un matériau composite. Cette étude est présentée sous la forme d'un article intitulé « *Development of a Characterization Mold to Measure the Transverse Thermal Conductivity of a Composite Material by Inverse Analysis* ». Dans cet article, une étude thermique est menée à travers des simulations numériques pour dimensionner le moule et déterminer l'emplacement des capteurs de pression permettant de mesurer la perméabilité. Un procédé de mesure expérimentale est présenté et enfin la méthode inverse est utilisée pour estimer la conductivité thermique transverse du matériau composite cuit.

Le chapitre 4 présente la même technique d'analyse inverse utilisée dans le premier article afin de mesurer la conductivité thermique longitudinale du matériau composite cuit. Des simulations numériques sont effectuées pour diverses configurations du système de chauffage pour déterminer une configuration optimale assurant un transfert thermique unidirectionnel pré requis à la mesure de la conductivité thermique. Cette étude est détaillée dans un article intitulé « *Development of a Characterization Mold to Measure the In-plane Thermal Conductivity of a Composite Material by Inverse Analysis* ».

Enfin, une conclusion résumant les contributions scientifiques de ce mémoire, ainsi que les perspectives orientant vers de nouvelles directions de recherche sont discutées. Les annexes 1, 2, 3, 4 et 5 présentent des méthodes et résultats expérimentaux importants qui n'ont pas été présentés en détail dans les articles 1 et 2.

CHAPITRE 1

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

1.1 INTRODUCTION

Actuellement, les matériaux composites représentent une excellente alternative aux matériaux métalliques classiques. La faible densité et la résistance à la corrosion ainsi qu'un coût de production relativement faible font que ces matériaux sont de plus en plus utilisés dans les industries aéronautique et automobile. La plupart des pièces de composite à haute performance sont fabriquées par le processus de Moulage par Transfert de Résine (RTM) en injectant une résine liquide dans un renfort fibreux préalablement placé dans la cavité d'un moule. Il existe de multiples combinaisons de matériaux et de nombreuses méthodes de fabrication rassemblées dans l'ouvrage de Mallick [7].

L'obtention des pièces composites de haute qualité avec le procédé RTM (excellente propriété mécanique, fini de surface..) exige un bon contrôle des aspects thermiques afin de maîtriser le remplissage de la pièce et la réaction de polymérisation. Plusieurs variables thermodynamiques telles que la température, ou thermophysiques telles que la chaleur spécifique du composite et la viscosité de la résine, régissent les phénomènes qui se produisent pendant le procédé d'injection. La température affecte l'écoulement de la résine en modifiant sa viscosité. Le transfert thermique dans le composite pendant l'injection de la résine et la cuisson est en particulier régi par la conductivité thermique qui quant à elle dépend de la température et du degré de cuisson. Il est donc important de modéliser le phénomène de transfert de chaleur dans les matériaux composites afin de prédire les variations de température au cours du procédé.

La suite de cette revue bibliographique présentera dans un premier temps le procédé RTM puis une synthèse sur la modélisation thermique. Des modèles cinétiques sont ensuite présentés avec une description des modèles utilisés pour prédire les conductivités thermiques transverse et longitudinale faisant l'objet de la présente recherche.

1.2 MOULAGE PAR TRANSFERT DE RESINE (RTM)

La Figure 1.1 montre un cycle complet de procédé RTM. Le renfort fibreux est d'abord placé dans un moule. Après fermeture du moule, la résine est injectée et le renfort est imprégné. La réaction chimique de polymérisation est accélérée par un catalyseur, et lorsque celle-ci est terminée, le contre-moule est retiré et la pièce est éjectée. Ce procédé permet de mouler des pièces de forme complexe. Le dispositif expérimental requis est généralement peu coûteux, car la résine est injectée à pression modérée. Pour l'instant, le RTM n'est rentable que pour des petites séries de production (de l'ordre de quelques milliers de pièces par année). Il est donc important d'optimiser le cycle de moulage, notamment par la maîtrise des paramètres thermiques, afin de diminuer le temps de cycle et d'augmenter ainsi le volume de production.

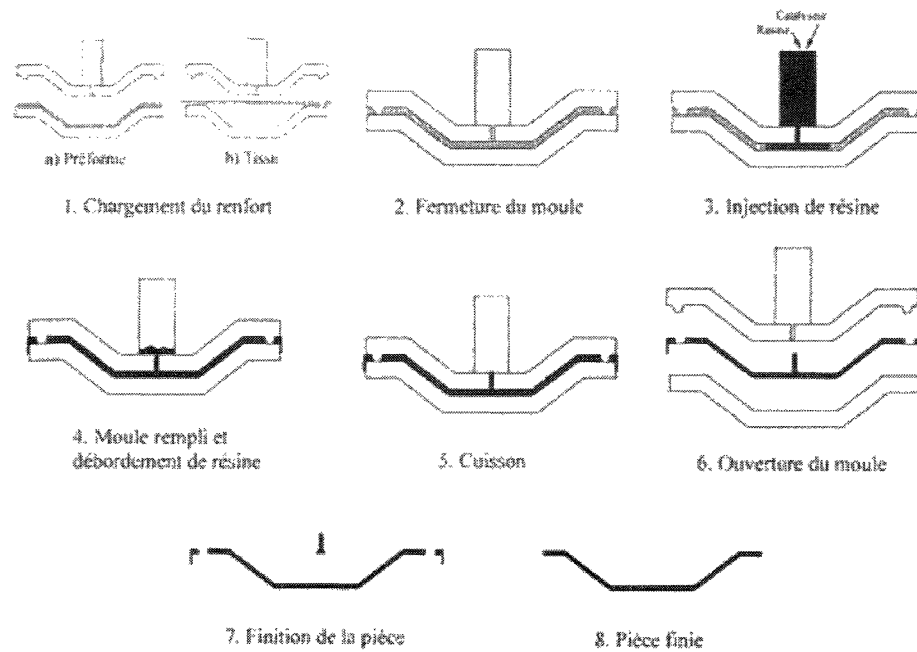


Figure 1.1 - Procédé RTM

1.3 MODELISATION THERMIQUE

L'aspect thermique du procédé RTM est important car il permet de mieux maîtriser l'écoulement, donc le remplissage de la pièce, ainsi que la réaction de polymérisation. Cette réaction étant exothermique [7], il faut donc composer avec une source de chaleur interne. Cela est possible par des simulations numériques en définissant les températures du moule et de la résine injectée. On dose aussi le catalyseur, afin d'amorcer la réaction en temps voulu et optimiser ainsi le cycle de cuisson de la pièce. Pour améliorer la productivité au sein de l'industrie, il faut abaisser le temps de cycle pour le moulage d'une pièce. A cette fin, il est possible de préchauffer le moule. Cela induit d'importants gradients de température lors de l'injection, qui peuvent éventuellement causer des défauts, même si le cycle est effectivement écourté [3]. La température devient donc une

variable importante qu'il convient de maîtriser et de modéliser, afin de simuler l'injection avec prise en compte des phénomènes thermiques.

Pour effectuer la simulation de l'injection, il faut tenir compte des différents phénomènes physiques qui se produisent durant les différentes étapes du processus de fabrication: phénomènes mécaniques, thermiques et chimiques. Au niveau mécanique, il s'agit d'un écoulement visqueux en milieu poreux, dont on trouve des simulations et analyses dans la littérature [9,10]. Notons aussi que des forces capillaires s'exercent entre les fibres et la résine quand la pression d'écoulement est faible. Enfin la viscosité de la résine varie avec la température. L'écoulement en milieu poreux est modélisé par l'équation de Darcy, où le débit de résine par unité d'aire est proportionnel au gradient de pression et inversement proportionnel à la viscosité. Il est donc important de connaître la variation de viscosité, qui est fonction de la température de la résine et de l'avancement de la réaction de polymérisation. Les forces capillaires sont habituellement faibles devant la pression, et on peut considérer soit qu'elles sont négligeables, ou bien qu'elles sont prises en compte dans les termes de perméabilité [11].

Les trois catégories de paramètres, thermique, mécanique et chimique, ne peuvent pas vraiment être précisément étudiées séparément. Cela est dû au couplage qui intervient entre eux. Les phénomènes thermiques interviennent sur l'aspect mécanique en modifiant la viscosité de la résine, mais aussi sur l'aspect chimique car la température influe sur la réactivité. Les aspects chimiques influencent aussi la thermique et la mécanique : la réaction est exothermique et fait donc augmenter la température; quant à la viscosité de la résine, elle varie avec l'avancement de la réaction chimique. Le degré d'avancement de la réaction de polymérisation influence la conductivité thermique et la chaleur spécifique, qui sont aussi fonction de la température. On peut donc voir que les phénomènes thermiques interagissent ainsi entre eux [12]. Il est aussi évident que les phénomènes mécaniques, par convection notamment ont une influence sur les transferts thermiques et sur la réaction chimique.

Dans la pièce en polymérisation, les phénomènes de conduction, convection, dispersion et génération de chaleur peuvent être modélisés par l'équation de convection-diffusion de la chaleur. La modélisation des transferts de chaleur lors de la polymérisation se fait en définissant tout d'abord le degré d'avancement α , $0 \leq \alpha \leq 1$, de la réaction chimique de polymérisation de la résine comme le rapport entre l'énergie de réaction par unité de masse $\Delta H(t)$ (Joules/Kg) dégagée pour passer de l'état initial où $\alpha = 0$ au temps $t = 0$ du début de la polymérisation à l'état courant au temps t et l'énergie totale de réaction ΔH^r (Joules/Kg) :

$$\alpha = \frac{\Delta H(t)}{\Delta H^r} \quad (1.1)$$

L'énergie dégagée par unité de temps par la réaction est proportionnelle à la dérivée du degré d'avancement par rapport au temps (vitesse de réaction). Elle s'exprime par $\rho_r \Delta H^r \frac{d\alpha}{dt}$ pour une unité de volume, où ρ_r est la masse volumique de la résine. La loi d'évolution de la fraction α peut se présenter de manière générale par une relation de type :

$$\frac{d\alpha}{dt} = F(\alpha, T) \quad (1.2)$$

Le modèle de transfert de chaleur par conduction pour la résine est donc représenté de manière générale par le système d'équations couplées suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_{\text{comp}} C_{p_{\text{comp}}}(\alpha, T) \frac{\partial T}{\partial t} = \text{div} \left[\lambda_{\text{comp}}(\alpha, T) \vec{\text{grad}}(T) \right] + \rho_r \Phi \Delta H^r \frac{d\alpha}{dt} \\ \frac{d\alpha}{dt} = F(\alpha, T) \\ + \text{Conditions initiales} \\ + \text{Conditions aux frontières} \end{array} \right. \quad (1.3)$$

Dans ce système d'équations, ρ_{comp} représente la masse volumique du composite, C_{Pcomp} sa chaleur spécifique, λ_{comp} sa conductivité thermique et Φ est la proportion de résine en masse dans le composite.

Ces paramètres sont obtenus par la loi des mélanges :

$$\rho_{\text{comp}} = \frac{\rho_r \rho_f}{\rho_r w_r + \rho_f w_f} \quad (1.4)$$

$$\lambda_{\text{comp}} = \frac{\lambda_r \lambda_f}{\lambda_r w_r + \lambda_f w_f} \quad (1.5)$$

où w_r et w_f sont respectivement les fractions massiques de la résine et des fibres, les notations f et r indiquent respectivement la résine et les fibres. La vitesse de réaction $\frac{d\alpha}{dt}$ dépend du degré d'avancement de la réaction α et de la température T.

On trouve aussi dans la littérature [12,13] l'expression de la chaleur spécifique d'un matériau composite dont la constitution en masse est de w_r % de résine (soit $w_f = (1 - w_r)$ % de fibres), selon la loi des mélanges :

$$C_{\text{Pcomp}}(\alpha, T) = w_r \cdot C_{\text{Pr}}(\alpha, T) + w_f \cdot C_{\text{Pf}}(T) \quad (1.6)$$

où C_{p_r} et C_{p_f} sont les chaleurs spécifiques respectives de la résine et des fibres. Notons que dans l'expression (1.6) la chaleur spécifique des fibres n'est fonction que de la température car celles-ci ne subissent pas de transformation lors de la réaction chimique. Pour détailler l'expression de la chaleur spécifique de la résine, on écrit la variation d'enthalpie sous l'effet de la température et de l'avancement de la réaction :

$$dH = C_p(\alpha, T) dT + \eta(\alpha, T) d\alpha \quad (1.7)$$

si nous supposons que le mélange des différents constituants de la matrice est idéal, le coefficient en facteur devant la variation du taux de réaction n'est pas fonction de ce dernier, soit :

$$\eta(\alpha, T) = \eta(T) \quad (1.8)$$

d'où :

$$dH = C_p(\alpha, T) dT + \eta(T) d\alpha \quad (1.9)$$

En outre, l'enthalpie étant une fonction d'état, la différentielle totale dH est exacte. Par conséquent, le théorème de Schwartz conduit à l'égalité suivante :

$$\frac{\partial C_p(\alpha, T)}{\partial \alpha} = \frac{\partial \eta(T)}{\partial T} \quad (1.10)$$

Cette dernière expression impose une variation linéaire de la chaleur spécifique en fonction du taux de transformation. On obtient donc l'expression de la chaleur spécifique de la résine en fonction de deux valeurs mesurées pour un degré d'avancement nul $C_{p_r}(0, T)$ et pour une réaction terminée $C_{p_r}(1, T)$ [14] :

$$C_{p_r}(\alpha, T) = \alpha.C_{p_r}(1, T) + (1 - \alpha).C_{p_r}(0, T) \quad (1.11)$$

Cette relation correspond à une loi de mélange idéal de deux phases, dont l'une est réticulée (résine cuite) et l'autre non réticulée (résine crue). La détermination de la chaleur spécifique se fait par *Calorimétrie à Balayage Différentiel* ou « *Differential Scanning Calorimetry* (DSC) [15] qui mesure la variation d'enthalpie avec le temps en comparant les flux de chaleur en fonction de la température et du temps entre un creuset contenant l'échantillon et un creuset vide de référence. Le principe de la DSC se rapproche de celui de l'*Analyse thermique différentielle* (ATD), qui enregistre la différence de température entre l'échantillon et un matériau de référence, dont la température de fusion et l'enthalpie totale de changement d'état sont connues avec précision.

1.4 PARAMETRES CINETIQUES

La polymérisation des résines thermodurcissables est une réaction chimique exothermique. La chaleur libérée par la polymérisation est en général très importante et contribue à augmenter la température du matériau. A la surface du moule, la chaleur est facilement dégagée par l'outillage. On rencontre moins de problèmes reliés à une éventuelle dégradation du matériau sur des pièces de faible épaisseur. Cependant, pour les pièces épaisses, la conductivité d'un composite étant faible, la température interne augmente rapidement, dépasse largement la température de cuisson et pouvant devenir excessive au point de dégrader de la résine [16]. Ceci peut causer une détérioration de la qualité de la pièce et la perte de ses propriétés mécaniques.

La cinétique de polymérisation peut être modélisée de plusieurs manières. En général, la vitesse de réaction est modélisée en fonction du degré d'avancement et de la température. D'une manière générale, on distingue deux approches : les modèles phénoménologiques et les modèles mécanistiques [17]. Un modèle phénoménologique

est généralement exprimé au moyen d'une équation relativement simple, qui propose une représentation empirique des effets exothermiques et ne prend pas en compte les détails de la manière dont les constituants chimiques prennent part à la réaction. Les modèles mécanistiques sont obtenus en prenant en compte ces détails. Bien que les modèles mécanistiques donnent de meilleures prédictions et fournissent une interprétation des phénomènes, il n'est pas toujours possible à cause de la complexité de la réaction. De plus, ils requièrent en général plus de paramètres à caractériser que les modèles phénoménologiques, qui sont utilisés la plupart du temps. Salla et Ramis [18,19] emploient par exemple des modèles phénoménologiques pour étudier l'influence des catalyseurs et promoteurs sur la cuisson d'une résine polyester insaturée.

Les modèles phénoménologiques catalytiques et autocatalytiques [12,20] qu'une seule réaction chimique permet de représenter le processus entier de cuisson. Le plus simple est le modèle catalytique :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k(1 - \alpha)^n \quad (1.12)$$

où n est l'ordre de la réaction et k obéit à une loi du type de la loi d'Arrhenius par rapport à la température, E est ici l'énergie d'activation de la réaction chimique, k_0 une constante préexponentielle, R la constante des gaz parfaits et T la température en degrés kelvin :

$$k = k_0 \exp(-E/RT) \quad (1.13)$$

Une réaction catalytique d'ordre n prévoit un taux maximum de réaction au temps $t=0$, ce qui n'est pas le cas pour une réaction de polymérisation, qui est plutôt de type

autocatalytique. Un modèle plus équilibré a donc été développé, le modèle autocatalytique, qui permet de prendre en compte le phénomène d'accélération de la réaction chimique :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k \cdot \alpha^m \cdot (1 - \alpha)^n \quad (1.14)$$

L'efficacité de ces modèles a été vérifiée pour une grande partie des résines thermodurcissables. Toutefois, le modèle le plus répandu reste celui de Kamal et Sourour [21], qui regroupe les deux précédents modèles en un seul et permet de représenter correctement à la fois la cuisson d'une résine époxy et d'un polyester insaturé :

$$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2 \cdot \alpha^m) \cdot (1 - \alpha)^n \quad (1.15)$$

où k_1 et k_2 sont des constantes d'Arrhenius (dont E_1 et E_2 sont les énergies d'activation, qui représentent la nature des réactions catalytique et autocatalytique) Les paramètres m et n peuvent prendre des valeurs non entières et décrivent l'ordre du mécanisme de cuisson.

Mentionnons aussi le modèle de Bailleul [12], où la fonction de température arrhénienne est multipliée par une fonction du taux de dégagement de la source thermique $G(\alpha)$. La vitesse de réaction prend alors la forme suivante :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k_0 \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) G(\alpha) \quad \text{avec } G(\alpha) = \begin{cases} > \alpha & \text{pour } 0 \leq \alpha < 1 \\ = 0 & \text{pour } \alpha = 1 \end{cases} \quad (1.16)$$

Le passage de la transition vitreuse est pris en compte dans ce modèle en imposant $G(\alpha) = 0$ si $T < T_g(\alpha)$ (Température de transition vitreuse en fonction du degré d'avancement de la réaction chimique).

Dans tous les modèles que nous venons de décrire, il est possible d'introduire une période d'induction qui permet de prendre en compte un laps de temps durant lequel le dégagement de chaleur est inhibé. Cette période d'induction est fonction du niveau thermique et obéit à sa cinétique propre. Elle est représentée par une fonction intégrale $\nu(T)$ ayant la dimension d'un temps qui est consommée au fur et à mesure de l'histoire thermique. Cette fonction est ensuite introduite dans la cinétique en multipliant le terme $d\alpha/dt$ par une fonction $W(\xi)$ (où ξ est une variable telle que $\xi = \nu(T)$) qui est nulle si la fonction d'induction $\nu(T)$ est positive.

L'inhibition suit une loi de type arrhénius, un modèle d'inhibition peut donc être proposé sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nu(T) = t_{\text{réf}} - \int_0^{t_{\text{ind}}} \exp\left(-B \left(\frac{T_{\text{réf}}}{T(t)} - 1\right)\right) dt = \xi \\ W(\xi) = \begin{cases} 0 & \text{si } \xi > 0 \\ 1 & \text{si } \xi \leq 0 \end{cases} \end{array} \right. \quad (1.17)$$

Dans cette expression $T_{\text{réf}}$ est une température de référence fixée. Les paramètres à déterminer sont $t_{\text{réf}}$ et B .

Des études cinétiques sont nécessaires pour déterminer expérimentalement les paramètres de ces différents modèles. Une estimation des paramètres peut généralement être obtenue à partir de mesure des pics exothermiques, de la vitesse de réaction à ces pics pour des séries d'expériences isothermes. Une des méthodes les plus utilisées dans

la littérature pour l'étude de la cinétique de réaction est la Calorimétrie à Balayage Différentiel (DSC), que ce soit en mode isotherme ou non-isotherme. La comparaison avec l'Analyse Thermique Différentielle (ATD) montre que la DSC est l'approche la plus efficace [17]. En effet, l'utilisation de l'ATD pour obtenir des informations quantitatives sur la cinétique de réaction de résines thermodurcissables est limitée à cause de la non-uniformité de la température dans l'échantillon pendant les mesures. Lors de mesures effectuées par ATD sur des solutions diluées, la température dans l'échantillon peut être maintenue uniforme pour des taux de chauffage faibles. Mais les difficultés pour maintenir cette uniformité apparaissent si l'échantillon devient solide, à moins qu'un échantillon très petit soit utilisé. En conséquence, une petite différence de température dans l'échantillon peut engendrer une différence significative de taux de réaction [22]. Un autre inconvénient inhérent à l'ATD est l'hypothèse que les propriétés thermiques sont constantes sur l'ensemble des températures étudiées. Comme les propriétés thermiques des résines thermodurcissables dépendent à la fois de la température et du degré d'avancement de la réaction chimique, la DSC est une méthode plus fiable car elle mesure directement le flux de chaleur [22].

Parmi les méthodes utilisant la DSC, on peut citer les techniques isothermes et les techniques non isothermes ou dynamiques. Les mesures isothermes ont l'inconvénient de prendre du temps. Il peut être aussi difficile de déterminer avec précision le taux de réaction à basse température, car celui-ci est trop faible. Il est donc parfois difficile de trouver la dépendance de la constante k avec la température. Il est possible de surmonter ces difficultés en utilisant une technique non-isotherme comme le balayage en température.

Les deux types de méthodes ont été comparés, et il s'est avéré que les résultats obtenus étaient fréquemment différents. Toutefois, les paramètres cinétiques évalués en utilisant des méthodes isothermes et non-isothermes étaient relativement proches. La différence

entre les deux proviendrait plus probablement de la faiblesse des modèles cinétiques plutôt que des techniques expérimentales employées.

1.5 MODELISATION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE

La modélisation de la conductivité thermique d'un matériau composite doit tenir compte de l'inhomogénéité du matériau. En appliquant une approximation homogène au matériau, on peut obtenir des modèles simples pour les conductivités thermiques transverse et longitudinale, qui sont validés dans le cas de renforts à fibres unidirectionnelles.

1.5.1 Approximation homogène

Pour modéliser l'évolution de la conductivité thermique en fonction de la température et de l'avancement de la réaction, il faut tenir compte de deux matériaux, dont les contributions à la conductivité doivent être analysées. La première démarche consiste à étudier la possibilité de considérer un milieu poreux comme homogène et à développer un modèle fondé sur la loi des mélanges. Un tel modèle peut présenter des limites au niveau de la répartition des pores, qui doit être aléatoire et uniforme. Sa validité a été vérifiée par Bauer [23] pour n'importe quelle conductivité, forme, nombre et concentration de pores. L'application de l'approximation homogène à la conduction transverse a été étudiée par Pitchumani et Yao [13] dans le cas de fibres unidirectionnelles. Un critère quantitatif fondé sur une épaisseur critique est établi pour l'homogénéisation. Une telle approximation peut engendrer de grosses erreurs d'analyse.

1.5.2 Modélisation de la conductivité thermique transverse

Tai [24] applique la loi des mélanges à une cellule unitaire et obtient des expressions pour la conductivité thermique équivalente correspondant à un flux de chaleur unidimensionnel dans le cas d'un matériau composite renforcé de fibres orthogonales. Il constate que prendre pour cellule une forme cubique ou cylindrique importe peu en ce qui concerne le flux de chaleur, car c'est seulement le taux de fibres qui compte vraiment. Dans les exemples étudiés, la conductivité thermique varie linéairement avec le taux de fibres. Cette linéarité est expliquée par la grande différence entre les conductivités transverse et longitudinale, qui fait que la partie dominante du flux de chaleur s'établit dans le sens longitudinal. Ces résultats sont cependant valables dans une situation idéale, car les imperfections ne sont pas prises en compte. Cette approche constitue néanmoins une modélisation raisonnable de la conductivité thermique transverse d'un matériau composite.

Une telle modélisation simple peut donc être obtenue par la loi des mélanges en prenant en compte les conductivités de la matrice et des fibres. Le modèle de Springer et Tsai [25] est couramment utilisé pour découpler l'influence des fibres et de la résine. Le taux volumique de fibres v_f intervient également dans ce modèle qui s'écrit comme suit :

$$\lambda_{\text{comp}} = \lambda_r \frac{(1 + v_f)\lambda_f + (1 - v_f)\lambda_r}{(1 - v_f)\lambda_f + (1 + v_f)\lambda_r} \quad (1.18)$$

Dans cette formule λ_{comp} est la conductivité thermique du composite, λ_r représente la conductivité thermique de la résine et λ_f la conductivité thermique des fibres. Ce modèle provient de l'application de la loi de conduction de la chaleur à des couches de matériaux différents disposés en parallèle et en série (analogie électrique) pour un réseau

de cylindres [24]. Il a été validé par Bailleul [12] sur un préimprégné unidirectionnel en fibres de verre / résine époxy. En modélisant la conductivité thermique de la résine en fonction de l'avancement de la réaction par une loi des mélanges sur les conductivités des résines crue et cuite, et en utilisant ensuite le modèle de Tsai, on obtient finalement la conductivité thermique du matériau composite en fonction de la température, de l'avancement de la réaction et des valeurs de la conductivité de la résine et des fibres.

1.5.3 Modélisation de la conductivité thermique longitudinale

En ce qui concerne la conductivité thermique longitudinale, un modèle simple est donné directement par la loi des mélanges, qui permet de déterminer la conductivité thermique de deux matériaux en parallèle. Ce modèle s'applique à un matériau composite dont les fibres sont unidirectionnelles :

$$\lambda_{\text{long}} = v_f \lambda_f + v_r \lambda_r \quad (1.19)$$

Dans le cas d'un pli dont les fibres sont orientées selon un axe x formant un angle θ non nul avec l'axe du matériau, la conductivité thermique longitudinale λ_{xx} selon l'axe x est obtenue par rotation d'un angle θ à partir des axes principaux de conductivité :

$$\lambda_{xx} = \lambda_{11} \cos^2 \theta + \lambda_{22} \sin^2 \theta \quad (1.20)$$

1.5.4 Validation des modèles

Les deux modèles présentés ci-dessus ont été validés par Farmer et Covert [25] qui ont mesuré les conductivités thermiques d'un matériau composite thermodurcissable par la

méthode de la plaque chaude gardée et comparé les résultats à ces modèles. Ils ont établi que le modèle (1.15) n'est valable que pour une géométrie connue (un réseau de cylindres) et ont cherché à identifier un modèle pour un réseau de fibres dont la géométrie est aléatoire. Ils ont identifié la relation (1.15) comme la meilleure borne inférieure possible pour un modèle de ce type, la borne supérieure étant donnée par :

$$\lambda_{\perp \text{sup}} = \lambda_f \frac{(1 + v_r)\lambda_r + (1 - v_r)\lambda_f}{(1 - v_r)\lambda_r + (1 + v_r)\lambda_f} \quad (1.21)$$

Ils ont aussi mesuré la conductivité thermique longitudinale du matériau composite selon des axes formant un angle de 0 à 90 degrés avec l'axe des fibres. Ils ont ensuite comparé leurs résultats expérimentaux avec la loi des mélanges (1.16) et obtenu de très bons résultats. Ils ont finalement effectué les mêmes mesures sur un laminé contenant plusieurs plis à différents angles. Le modèle simple choisi pour un tel laminé, dérivé des lois classiques sur les laminés, s'est montré suffisamment précis, puisque les valeurs obtenues par la modélisation étaient toujours à l'intérieur de l'incertitude expérimentale.

1.6 METHODES DE DETERMINATION DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE

Grâce aux modèles de conductivité thermique, diverses méthodes pourront être développées pour mesurer ce paramètre. On utilise en général des thermocouples afin d'obtenir les profils de température. Tervola [26] présente par exemple une méthode numérique pour déterminer la conductivité thermique d'un matériau homogène à partir de profils de température mesurés. Un problème d'optimisation est posé dans lequel l'équation de la chaleur apparaît comme une contrainte, qui est résolue par une

technique d'éléments finis à chaque itération. Cependant, le problème est mathématiquement mal conditionné numériquement, car les mesures expérimentales ne sont pas exactes. Dans le cas des méthodes inverses par exemple, même si les équations du modèle sont exactes, il peut exister des situations où le minimum du critère à minimiser est très sensible à de faibles erreurs de mesure [27].

Les méthodes de détermination de la conductivité thermique peuvent être classées en trois grands groupes [28] :

- 1) Méthodes en régime permanent
- 2) Méthodes en régime variable
- 3) Méthodes inverses

Dans la première famille, le temps n'intervient pas et ces méthodes permettent d'obtenir uniquement la conductivité thermique. Les méthodes en régime variable sont actuellement les plus utilisées. Elles consistent à appliquer une perturbation thermique sur un échantillon à l'équilibre et à mesurer l'évolution des températures en fonction du temps. Elles se différencient par la nature de la perturbation, le type de mesure et la géométrie du problème. Les mesures en **régime permanent** se caractérisent par la mesure simultanée d'un flux de chaleur traversant l'échantillon et d'une différence de température.

1.6.1 Méthodes en régime permanent

La méthode de la plaque chaude gardée [2] est une méthode en régime permanent utilisée pour les isolants, dont les matériaux composites font partie. La géométrie est une plaque de forme cylindrique ou parallélépipédique de faible épaisseur par rapport à ses dimensions transverses (Figure 1.2). Deux échantillons sont disposés de part et d'autre d'un élément chauffant (plaque chaude). Les échantillons sont refroidis par les puits de chaleur (plaques froides). L'ensemble est isolé thermiquement. L'anneau entourant la

plaque chaude peut être chauffé afin d'ajuster sa température à celle de la plaque pour éliminer les pertes radiales de chaleur. On obtient alors un régime permanent dans lequel les deux échantillons sont soumis à une différence de température ΔT .

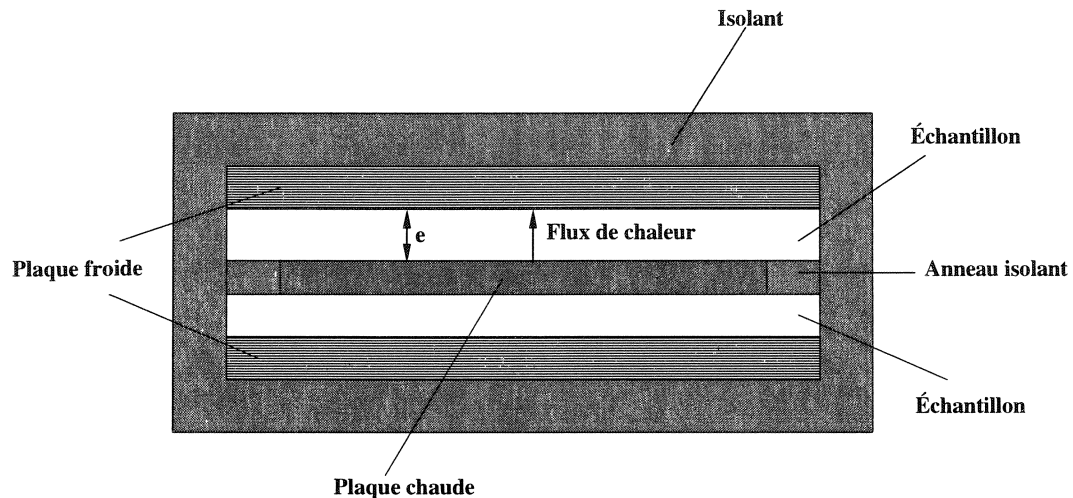


Figure 1.2 - Méthode de la plaque chaude gardée

Le flux est obtenu directement par la mesure de la puissance dégagée dans l'enroulement principal de la plaque chauffante. Les appareillages peuvent fonctionner pour des gammes de température variées. La mise en œuvre expérimentale d'un tel dispositif est délicate dans tous les cas. La connaissance de l'épaisseur de l'échantillon, de l'écart de température entre les deux faces et de la densité de flux d'énergie utilisée pour le chauffage permet d'obtenir directement la conductivité thermique à travers la relation de Fourier. Un tel dispositif pose des problèmes pour mesurer la conductivité thermique d'un matériau composite cru, car il ne faut pas initier la réaction chimique et le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre thermique est important.

Citons aussi la méthode du fil chaud, qui fait partie des méthodes en régime quasi-établi et qui consiste à placer un fil résistif entre deux plaques de matériau isolant [1]. Les

plaques sont soumises à un créneau en flux, délivré sous forme d'effet Joule par le fil résistif. Si le fil est supposé infiniment long et de rayon négligeable, le transfert est radial et la conductivité thermique peut être identifiée à partir de l'évolution de la température en un point donné. Cette méthode qui apparaît pourtant plus simple est en fait difficile à mettre en œuvre, car un étalonnage très précis du fil chaud est nécessaire. On trouve assez simplement la conductivité en fonction de la puissance de chauffage du fil.

1.6.2 Méthodes en régime transitoire

Les méthodes de mesure en régime transitoire se caractérisent par la mesure d'une seule (ou deux) température(s) rapidement variable(s) avec le temps. Ces mesures permettent d'obtenir la diffusivité thermique. La mesure est simple, mais les modèles et la méthode d'identification sont généralement complexes. La perturbation thermique est du type Dirac et plusieurs techniques sont regroupées sous le nom générique de « méthode flash ». le principe de base initial de cette méthode est le suivant : un échantillon cylindrique à faces parallèles est soumis sur l'une de ses faces (dite face avant) à une impulsion thermique de courte durée. La mesure de la réponse en température de l'échantillon sur la face opposée (dite face arrière) permet d'identifier la diffusivité thermique du matériau. Encore une fois, ces méthodes sont assez délicates à mettre en œuvre, et sont de plus généralement utilisées pour des matériaux dont les propriétés ne dépendent pas de la température. L'approximation homogène pose aussi un problème dans le cas des matériaux composites à cause de la faible épaisseur de l'échantillon.

1.6.3 Méthodes inverses

Les méthodes inverses ont beaucoup apporté dans le domaine de la métrologie thermique [6], en facilitant le choix d'un modèle mathématique approprié, en permettant de déterminer des paramètres de sensibilité et d'une manière générale, en favorisant une conception optimale des expériences. Une méthode inverse consiste à résoudre le problème direct en se donnant une conductivité initiale. On compare alors les températures calculées avec les valeurs mesurées dans la pièce pendant l'expérience et on estime un critère d'écart, comme par exemple un critère des moindres carrés (somme des carrés des différences entre températures mesurées et calculées). La conductivité initiale est alors modifiée de manière à minimiser le critère d'écart par itérations successives. Un seuil de précision est fixé pour arrêter les itérations. On peut citer comme exemple de méthode inverse la méthode flash « face arrière », ou encore la méthode de la sphère, du fil ou du plan chaud [28]. Ces trois méthodes suivent le même principe mais permettent d'identifier la conductivité suivant un nombre différent d'axes : la sphère chauffante permet de résoudre un problème tridimensionnel, le fil chauffant un problème bidimensionnel, et enfin le plan chaud se limite à des transferts thermiques unidirectionnels.

On trouve dans la littérature divers exemples d'utilisation des méthodes inverses afin de déterminer la conductivité thermique, parfois simultanément avec la capacité calorifique. Huang et Ozisik [29] proposent par exemple une méthode afin d'améliorer la valeur initiale des paramètres et éviter ainsi de trop nombreuses itérations, voire une non convergence de la solution. Leur étude se place dans le cas d'une conductivité et d'une capacité thermique qui varie linéairement avec la température. Huang et Han [30] utilisent une méthode inverse par gradients conjugués pour déterminer simultanément la conductivité en fonction de la température et de la capacité thermique. Ils examinent la précision de leur analyse inverse en utilisant des solutions exactes ou approchées de l'équation de la chaleur. Chen et Lin [31] ont poursuivi les travaux de Tervola [26] et de

Huang et Ozisik [30] en incluant des approximations numériques fondées sur la transformation de Laplace. Ces deux études montrent que l'on n'a pas besoin d'information à priori sur la forme des fonctions inconnues.

1.7 CONCLUSION

Les matériaux composites à résine thermodurcissable sont des matériaux complexes qui nécessitent des modèles à la fois simples et précis. Dans le cas de la cinétique de la réaction de polymérisation, des modèles comme celui de Kamal-Sourour ou celui de Bailleul, couplés à un modèle d'inhibition, sont efficaces pour bien décrire l'avancement de la réaction chimique, ce qui permettra de simuler le comportement de la résine lors d'une montée en température afin d'optimiser le cycle de chauffage nécessaire à la caractérisation thermique du matériau composite. La DSC (Differential Scanning Calorimetry) est la méthode la plus fiable pour ce type d'étude. Il est aussi possible de déterminer la capacité calorifique d'une résine par DSC; ce paramètre est très important car on le considère connu lors d'une caractérisation de conductivité thermique par méthode inverse.

Des modèles simples pour les conductivités thermiques transverse et longitudinale d'un composite à fibres unidirectionnelles ont été validées. Elles permettent de retrouver ces conductivités en fonction du taux de fibres et du degré d'avancement de la réaction de polymérisation, à partir de mesures sur le composite cru puis cuit.

Parmi les méthodes possibles pour identifier la conductivité thermique d'un matériau, les méthodes inverses sont les plus adaptées aux spécificités des matériaux composites. Les méthodes en régime permanent sont peu adaptées à cause de la réaction chimique qui a lieu dans la résine. On dispose donc des méthodes et des modèles théoriques nécessaires afin de déterminer les conductivités thermiques d'un matériau composite.

CHAPITRE 2

PRÉSENTATION DU MEMOIRE ET DES OBJECTIFS DE LA RECHERCHE

2.1 INTRODUCTION

Le but de cette recherche est de valider, en première partie, les expériences effectuées pendant les travaux antérieurs [33] pour mesurer la conductivité thermique transverse du matériau composite. La conductivité thermique de la résine crue a été ensuite déterminée afin de comparer les résultats expérimentaux à un modèle théorique. Des expériences ont été également menées pour un matériau de conductivité thermique connue pour valider le dispositif expérimental et pour tester les limites de la méthode inverse dans la mesure de la conductivité thermique.

Dans une deuxième partie, la conductivité thermique longitudinale a été identifiée par des expériences effectuées avec le moule thermique en proposant une préparation de la pièce composite. différentes configuration du système de chauffage ont été étudiées et comparées avec d'autres configurations possibles à travers des simulations numériques. La méthode inverse employée dans cette étude a été développée et testée dans une étude antérieure effectuée par Sobotka [14].

Dans ce chapitre, nous présentons ces travaux qui ont conduit à des articles soumis à des journaux internationaux pour une publication.

2.2 PRÉSENTATION DU CHAPITRE 3

Le chapitre 3 de ce mémoire est présenté sous forme d'article intitulé « *Development of a Characterization Mold to Measure the Transverse Thermal Conductivity of a Composite Material by Inverse Analysis* ». Ce papier co-écrit par B. Assaf, H. Menge, V. Sobotka et F.Trochu a été soumis à la revue *Journal of Reinforced Plastics & Composites*.

L'approche utilisée pour déterminer la conductivité thermique est fondée sur une méthode inverse d'identification de paramètres développée par Sobotka [14]. Cette méthode avait été utilisée avec un dispositif expérimental de mesure qui a permis la validation du code de calcul. Le code de calcul est employé ici pour traiter les données expérimentales mesurées lors des essais avec le moule thermique.

Tout d'abord, il faut résoudre le problème direct de l'équation de la chaleur avec une valeur initiale hypothétique de la conductivité thermique λ du composite à l'aide d'une méthode numérique ou analytique quelconque. Ainsi, on obtient une première approximation du champ de température théorique dans tout le domaine, que l'on compare avec les températures mesurées directement dans le matériau. Ensuite, on évalue le carré de la différence entre les températures calculées et mesurées à chacune des positions des capteurs pendant l'évolution du transfert de chaleur. Si l'erreur est inférieure à un certain seuil, la valeur estimée de λ est corrective. Si l'erreur est supérieure à ce seuil, alors il faut faire un autre choix de λ et recommencer les calculs. Pour converger vers une valeur de la conductivité thermique λ , minimisant l'erreur au sens de moindres carrés, la méthode d'optimisation des gradients conjugués est utilisée. L'erreur au sens de moindres carrés est évaluée en fonction de la valeur estimée de la conductivité thermique λ , puis le gradient de cette fonction est déterminé. Ce gradient indique la direction de descente pour minimiser l'erreur lors du choix d'une nouvelle valeur de la conductivité thermique.

Pour donner des résultats fiables et reproductibles, l'utilisation de la méthode inverse dans la détermination de la conductivité thermique transverse nécessite un transfert de chaleur unidirectionnel dans le composite à caractériser parce que la méthode repose sur la solution transitoire de l'équation de la chaleur en une dimension. Il est donc capital que le dispositif expérimental conçu pour cette mesure vérifie cette condition. Une étude antérieure menée par Jauffres [32] propose un moule carré pour fabriquer des plaques composites planes. Dans cette étude, des simulations numériques bidimensionnelles et tridimensionnelles ont été effectuées par Menge [33] pour modifier la géométrie du moule en fonction de la position de deux capteurs de pression ajoutés au moule pour mesurer la perméabilité et la pression d'injection. Le but de cette étude était de s'assurer que malgré l'ajout des capteurs le transfert de chaleur reste unidirectionnel à travers l'épaisseur du matériau composite dans une zone au moins dix fois plus étendue que l'épaisseur.

Dans ce travail, la conductivité thermique de la résine polyester cuite est d'abord mesurée par la méthode inverse en prélevant les températures de trois thermocouples placés dans l'épaisseur de la plaque. La conductivité thermique transverse du matériau composite à base d'une résine polyester et des fibres de verre unidirectionnelles est ensuite mesurée suivant les mêmes démarches. Les résultats sont comparés à ceux déduits du modèle de Springer et Tsai et montrent une bonne concordance. Les données expérimentales sont présentées dans l'annexe 3.

Afin de valider le code de calcul, des expériences ont été menées pour un matériau de conductivité thermique connue. Le laiton a été choisi pour sa facilité d'usinage. Deux plaques de section rectangulaire ont été préparées. Les deux thermocouples qui fournissent les valeurs de température servant de conditions limites dans le logiciel de méthode inverse ont été placés de la manière suivante : le premier thermocouple a été placé entre la plaque de laiton supérieure et le plateau supérieur du moule ; le second thermocouple en contact avec la surface de la cavité mobile. Le troisième thermocouple

a été placé entre les deux plaques de laiton et inséré dans une rainure usinée dans la plaque supérieure.

Le problème rencontré pendant cette expérience a d'abord été de nature électrique. En effet, le thermocouple est fabriqué par la jonction de deux métaux différents (ici c'est le chromel et l'alumel). Le contact de l'extrémité du thermocouple avec l'aluminium et le laiton ne fournit pas un résultat de température suffisamment stable, ce qui empêche un fonctionnement adéquat du système d'acquisition de données. Pour remédier à ce problème, l'extrémité du thermocouple a été isolé électriquement, mais pas thermiquement. La colle époxy a été choisie pour fixer et isoler les trois thermocouples sur les plaques. De plus, pour éviter l'écrasement des thermocouples entre les plaques, une rainure de 1 mm de profondeur a été prévue tout le long des plaques là où les thermocouples sont positionnés (voir annexe 4). Une couche de silicone a été déposée sur les surfaces des plaques pour diminuer la résistance de contact entre elles et des expériences ont été effectuées sans et avec cette couche de silicone pour étudier son impact sur les données expérimentales de la température (annexe 4).

Un autre problème a été rencontré avec le laiton. La forte conductivité thermique de ce matériau (115 W/mK) entraîne que son équilibre thermique est atteint après une très courte période de chauffage. Les deux thermocouples situés sur la même plaque enregistrent les mêmes températures ce qui empêche le code de calcul par la méthode inverse de trouver des valeurs de la conductivité thermique en fonction de l'évolution de la température. Les résultats de cette expérience sont présentés dans l'annexe 4.

2.3 PRÉSENTATION DU CHAPITRE 4

Le chapitre 4 de ce mémoire est aussi présenté sous forme d'article intitulé « *Development of a Characterization Mold to Measure the In-plane Thermal Conductivity of a Composite Material by Inverse Analysis* ». Ce papier co-écrit par B. Assaf et F. Trochu a été soumis à la revue *Composites Science and Technology*.

Après avoir dimensionné dans le chapitre 3 le moule et mesurer ensuite la conductivité thermique transverse du matériau composite, une étude pour mesurer la conductivité thermique dans le plan des fibres est effectuée.

Des simulations numériques sont effectuées pour diverses configurations du système de chauffage afin de déterminer une configuration optimale assurant un transfert de chaleur unidirectionnel pré requis à la mesure de la conductivité thermique longitudinale. La configuration initiale du système de chauffage s'est avérée la plus appropriée. Seulement une préparation de l'échantillon du composite moulé est nécessaire de telle manière que les fibres soient orientées verticalement. Les résultats expérimentaux de la conductivité thermique longitudinale sont comparés à ceux déduits par la loi des mélanges. Les données expérimentales sont présentées dans l'annexe 3.

Cette expérience a été effectuée à deux reprises afin de s'assurer de sa reproductibilité, mais la deuxième expérience n'a pas fourni de résultats pour la conductivité thermique à cause d'un bris du thermocouple situé dans l'épaisseur de la pièce dû probablement à une fausse manipulation lors du soudage des deux fils du thermocouple.

2.4 CONCLUSION

Dans ce chapitre, les travaux menés pendant cette étude ont été présentés. La modification des dimensions du moule ainsi que l'ajout des capteurs de pression ont été effectués par Menge [33] et la méthode inverse utilisée dans cette étude a été développée par Sobotka [14]. Dans ce travail, l'étude menée par Menge a été validée à travers des expériences pour déterminer la conductivité thermique transverse. Des expériences ont été également effectuées pour un matériau de conductivité thermique connue, le choix du laiton n'a pas fourni des résultats parce que ce matériau possède une forte conductivité thermique qui fait que les thermocouples situés sur une même plaque enregistre la même température après une très courte durée de chauffage. Par conséquent, la méthode inverse basée sur le prélèvement de température de trois thermocouples positionnés dans l'épaisseur du matériau ne pourra pas être employée. L'utilisation d'un système d'acquisition de donnée plus rapide est nécessaire ou un autre choix d'un matériau de conductivité thermique relativement faible comme le téflon ou le silicone permettra le fonctionnement adéquat du système d'acquisition des données actuel pour utiliser ensuite la méthode. Le silicone paraît un bon choix du fait qu'une pièce pourra être reproduite avec le moule par moulage à la main qui permet un positionnement des thermocouples au sein de ce matériau sans avoir recours aux rainures sur les surfaces pour éviter l'écrasement des thermocouples. La méthode inverse a donc des limites d'utilisation dépendantes de la nature du matériau à tester ou le choix du système d'acquisition des données. La mesure de la conductivité thermique longitudinale a été effectuée avec le moule et de la méthode inverse employée a été décrite auparavant.

CHAPITRE 3

DEVELOPMENT OF A CHARACTERIZATION MOLD TO MEASURE THE TRANSVERSE THERMAL CONDUCTIVITY OF A COMPOSITE MATERIAL BY INVERSE ANALYSIS

B. Assaf, H. Menge, V. Sobotka, F. Trochu

Applied Research Center on Polymer (CRASP)

Department of Mechanical Engineering, École Polytechnique de Montréal

Station «Centre-Ville», H3C 3A7, Canada

3.1 ABSTRACT

In the present work, the transverse thermal conductivity of a composite material is determined by inverse analysis of the heat conduction phenomenon. Knowing the evolution of boundary conditions in time, i.e., the bottom and top surface temperatures of a specific sample, the thermal conductivity can be deduced from transient temperature measurements at three given positions through the thickness of the part. Starting from an initial estimate of the thermal conductivity, the inverse method begins by solving the direct problem, i.e., the heat equation. The solution gives the transient temperature field everywhere in the composite sample. Calculated temperatures are then compared with transient experimental measurements based on a criterion evaluating the integral in time of the square distance between the measured and predicted temperatures. Conductivity is modified iteratively so as to minimize this criterion until the desired accuracy is

achieved. The inverse methodology is tested in this paper for a composite part made out of unsaturated polyester resin and unidirectional glass fibers. A special multi-functional mold was designed to produce the composite test plates by RTM and at the same time, measure the transverse thermal conductivity as a function of time and resin degree of polymerization. The mold has an adjustable cavity depth to accommodate various experimental configurations and allow easy testing of a series of different fiber volume contents. It is equipped with controlled heating and cooling devices. Numerical simulations were performed to determine the dimensions of the mold and to optimize the positions of temperature and pressure sensors.

3.2 INTRODUCTION

The *Resin Transfer Molding* (RTM) process is increasingly used in the automotive and aerospace industries to manufacture high performance composites by injecting a liquid resin through a fibrous reinforcement previously laid up in a mold cavity. Several thermodynamic variables, including temperature, composite specific heat and resin viscosity govern the physical phenomena that occur during the injection process. Temperature affects the resin flow through resin viscosity and heat of polymerization [1]. The heat transfer in the part during resin injection and cure is partly governed by thermal conductivity, which depends on temperature and degree of cure. Because of the importance of transverse heat conductivity, several empirical and semi-empirical methods were developed to estimate this parameter. The most important ones are purely empirical techniques such as the hot wire method [2]. The principle of the hot wire consists of placing a resistive wire on the axis of a cylindrical sample of a supposedly infinite radial extension. The initially isothermal sample is subjected to a heat flux delivered by Joule effect in the resistive wire. If the wire is considered infinitely long

and of negligible radius, the heat transfer is radial and thermal conductivity can be identified from the temperature evolution measured at a chosen location.

Semi-empirical methods can be grouped in three main families depending on the approach selected, namely the stationary, transient and inverse techniques. The stationary technique is based on the method of the guarded hot plate and on Fourier's equation of heat conduction [3]. From the temperature variation between the two faces of a sample, one can directly estimate the thermal conductivity. This method gives satisfactory results. However, thermal equilibrium is reached only after a long period during the experiment. This may become an issue if the material properties change with temperature, which is the case during the cure of composite materials. Transient techniques, such as the method of the "shock probe" [4,5] and the flash method [6] can be used only if the properties of the material do not depend on temperature, otherwise only a rough estimation can be expected. These methods are therefore not appropriate for high performance composites, of which material properties vary with temperature and degree of cure.

The goal of this investigation is to develop a mold to measure the transverse thermal conductivity of a raw and cured composite as a function of temperature and degree of cure. Based on inverse thermal analysis [7], knowing the evolution in time of temperature boundary conditions on the top and bottom surfaces of a composite sample, the measurement of temperature in the middle of the thickness of the composite allows determining the thermal conductivity of the material. The inverse method has been widely used in thermal metrology along with different experimental procedures [8-11]. It uses an appropriate optimization algorithm to determine the sensitivity of process parameters and provide an optimal design for the experiments. A new multi-functional mold was designed to produce composite test plates by RTM and perform the experiments required to measure thermal conductivity. In the inverse methodology implemented in this paper, thermal conductivity is deduced from temperature measurements through the thickness of the part. This approach will be validated by

numerical simulations and a series of experiments performed for a glass fiber polyester composite.

The experimental validation of the inverse methodology is carried out here for the cured composite only, but the same approach can be clearly applied to the raw composite. The thermal conductivity λ can then be obtained as a function of temperature T and degree of cure α by the rule of mixture:

$$\lambda(T, \alpha) = (1 - \alpha)\lambda_{\text{cured}}(T) + \alpha\lambda_{\text{raw}}(T) \quad (1)$$

where $\lambda_{\text{raw}}, \lambda_{\text{cured}}$ denote the thermal conductivities of the raw, cured composite, respectively.

3.3 EXPERIMENTAL MOLD

The mold of Figure 3.1 , p.52, was designed by Jauffres [12] to measure the transverse thermal conductivity of composite materials. The results of the simulations performed by Jauffres showed that a cavity of size equal to 100×100 mm is sufficient so as to neglect thermal losses along the edges of the mold and in the vicinity of the injection port and vent. Table 3.1 indicates the properties of the materials used in the simulations.

Since it is necessary to have pressure transducers in the mold to measure parameters such as permeability and the injection pressure, numerical simulations were performed in order to determine their optimal position and verify that the heat transfer in the mold cavity remains unidirectional. The mesh of Figure 3.2 is built using the automatic meshing software GMSH [13] and the simulations were carried out with PAM-RTM [14], a commercially available finite element RTM flow analysis software. Figure 3.3 shows the temperature field calculated in a vertical section of the mold. Since the pressure sensor made of steel is placed in the center of the aluminum mold, the

temperature distribution in the mold as well as in the cavity is disturbed. The through-thickness heat flow is no longer unidirectional. This prevents from performing an accurate measurement of the thermal conductivity by inverse analysis. Therefore the mold has to be enlarged to reduce the disturbance of the through-thickness heat transfer and the pressure sensor slightly shifted towards the edge of the mold. A series of simulations with different mold lengths and sensors position was carried out in order to achieve an optimal design.

To make the mold multi-functional and in particular, in order to perform unidirectional permeability measurements, a rectangular shape of 110 x 320 mm was selected and two pressure sensors were placed at 79 mm from the edges of the mold. This design will now be investigated in detail to validate the measurement of the transverse thermal conductivity. The characterization mold is equipped with a system to control the depth of the cavity, two pressure sensors close to the injection port and vent, and thermocouples to control its temperature.

3.3.1 Design of the characterization mold

The mold assembly of Figure 3.4 is composed of two main parts that will be heated or cooled uniformly. The mold contains a mobile cavity in the bottom part and a cover through which the resin is injected. The system is brought to the desired temperature by a set of heating cartridges along the surfaces of the top cover and cavity. Pressure and temperature sensors are placed in the mold in order to measure the pressure close to the injection port and vent and to record the evolution of temperature in the mold.

The mold is made out of aluminum and resists to process temperatures up to 200°C and to the injection pressure (138 KPa). The high thermal conductivity of aluminum ensures a uniform temperature distribution in the mold. This means that a unidirectional heat

transfer takes place through the thickness of the composite. The mold is insulated on all its lateral sides and on the top and bottom faces in order to minimize heat losses and ensure the maximum possible uniformity of in-plane heat flow in the composite.

3.3.2 Cavity control

The mold was devised to produce flat panels of different thickness. The bottom of the cavity consists of a mobile plate equipped with a control mechanism to vary the thickness via four screws positioned along the four edges of the mold (Figure 3.4). The thickness of the cavity is measured and verified before molding with a dial indicator depth gage. The latter gives an accurate measurement of the depth at each corner of the cavity and allows keeping the base plate uniform and parallel to the mold cover. A rubber seal is placed between the cover and the base plate to prevent resin leaks.

3.3.3 Pressure monitoring

The internal pressure in the mold is monitored with pressure transducers. A melt pressure transducer is used to resist the harsh environment of liquid composite molding and to the corrosive chemical species added to the resin. The pressure sensors chosen exhibit a high accuracy in the range of low pressures encountered in RTM.

3.4 INVERSE METHOD

The inverse method adopted is the standard unidirectional version based on an optimization algorithm that consists of the following main steps. Using an initial guess

of the thermal conductivity, the one-dimensional equation that governs the transient heat transfer by conduction is solved numerically through the thickness of the part. Then the temperature evolution at any point within the part is obtained. The calculated and experimentally measured temperatures at a given position through the thickness of the composite are used to integrate in time the least square error between predicted and measured values. An optimization procedure based on the gradient descent method is implemented to update the thermal conductivity by minimizing this criterion. The iteration is stopped once the error is lower than a given accuracy.

3.4.1. Solving the direct problem

The direct problem consists of solving numerically the one-dimensional transient heat conduction equation. The energy balance expressed in terms of the temperature T is written as:

$$\frac{\partial}{\partial x} \left[\lambda(T) \frac{\partial T}{\partial x} \right] = \rho C_p(T) \frac{\partial T}{\partial t}; \quad 0 < x < L \quad (2)$$

where the following parameters are defined for the composite material:

ρ	density (kg/m ³),
$C_p(T)$	specific heat (J/Kg °C),
$\lambda(T)$	thermal conductivity (W/mK),
L	length of the part (m),

Subjected to the following boundary conditions:

$$\begin{cases} T(0, t) = T_1(t) & t > 0 \\ T(L, t) = T_2(t) & t > 0 \\ T(x, 0) = T_0(x) & 0 < x < L \end{cases} \quad (3)$$

where $T_1(t)$ and $T_2(t)$ denote the temperatures at the top and the bottom boundaries of the part, while $T_0(x)$ represents the initial temperature field.

The temperature dependent specific heat $C_p(T)$ and the constant density ρ are assumed to be known. The specific heat is determined as a function of temperature by differential scanning calorimetry, so only the thermal conductivity $\lambda(T)$ of the composite material needs to be identified in equation (2).

For a number N of thermocouples set in the cavity, the least square criterion $J(\lambda)$ is expressed as:

$$J(\lambda) = \sum_{j=1}^N \int_0^{t_f} [T(x_j, t) - Y_j(t)]^2 dt \quad (4)$$

where t_f is the total time of the experiment, $Y_j(t)$ represents the temperature measured at point $x_j, 1 \leq j \leq N$, and $T(x_j, t)$ is the temperature calculated at the same locations. The flow chart describing the inverse method is shown in Figure 3.5. The direct problem with an initial value of λ for the composite is solved numerically. The difference between the calculated temperature value and temperature measured experimentally is estimated at each location.

The functional $J(\lambda)$ expressed in equation (4) has to be minimized, subjected to the constraint represented by the ordinary differential equation of heat conduction (equation 2). The thermal conductivity minimizing $J(\lambda)$ is identified here by the gradient descent method with Lagrange multipliers to account for the constraint (see Jarny [7] and Richer [8]).

3.5 THERMAL ANALYSIS OF THE MOLD

The use of the inverse method to measure thermal conductivity is based on the knowledge of temperature at selected positions in the composite sample subjected to given temperature boundary conditions on its top and bottom surfaces. In order to perform accurate measurements, the temperature sensors have to be placed in a region where the temperature distribution is not affected by the mold edges, pressure transducers, injection port and vent. Simulations have been performed using PAM-RTM to design the test mold and validate the inverse methodology.

The mold is mainly made out of aluminum. The heating cartridges have the same thermal properties as the stainless steel pressure transducers. Table 3.2 summarizes the physical properties of the materials used in the simulation, including the rubber and the composite material. A reference value of 0,3 W/mK for the thermal conductivity of the composite material is taken from Sobotka [15].

3.5.1 Two-dimensional simulation results

The mesh of Figure 3.6 is built using the automatic meshing software GMSH. Each zone of interest including the mold, pressure transducers and cavity are taken into account in the mesh and are assigned the thermal properties of the corresponding materials. The mesh is refined from the top and bottom boundaries towards the center of the cavity where the transverse thermal conductivity of the composite is to be measured. The cavity thickness was set to 20 mm for all the numerical simulations conducted in this investigation.

Simulations are performed with the top and bottom mold surfaces subjected to a progressive linear heating ramp as boundary condition. The zone where the temperature distribution is nearly uniform, i.e., with no edge effects, has to be located. The mold top and bottom surfaces are heated from 25 to 195°C at a rate of 10 °C/min. Figure 3.7 shows the temperature distribution in the mold after 941 sec. The steady state is not reached yet and a temperature gradient is observed across the thickness. However, the temperature is not uniform in the horizontal direction. A delay in the temperature rise near the sides of the part is observed due to the presence of the pressure transducers. Nevertheless, the central region is nearly not affected, which makes it adequate for the temperature measurements required to determine the transverse thermal conductivity. In order to confirm the stability of the central region during heating, the same simulation is performed again with two sets of five equally spaced virtual temperature sensors positioned through the thickness of the cavity. The first set of sensors is placed at the center and the second is shifted 20 mm to the left (Figure 3.7).

The evolution of temperature differences between two sensors located at the same depth in the composite is expressed in percentage in Figure 3.8. Less than 0.5% difference is observed, which means that the heat transfer in this zone is almost unidirectional through the thickness. The 2D simulations showed that the design of the mold allows an

accurate measurement of the transverse thermal conductivity. However, a final 3D simulation will be performed in order to confirm this result.

3.5.2 Three-dimensional simulation results

A 3D mesh of the mold is constructed with the mesh generation software I-DEAS [16]. Figures 3.9 and 3.10 show the temperature distribution in the vertical and horizontal sections of the mold. The temperature profiles are similar to those obtained with the 2D simulations. It is clear that the presence of the pressure transducers does not affect the zone of interest in the center of the mold. Figure 3.11 shows the temperature distribution at the interface between the composite and the mold. This confirms that the zone located between the two pressure transducers is uniformly heated. This central zone can therefore be safely selected for the thermal conductivity measurements.

3.5.3 Description of the mold

Figure 3.12 shows a vertical cut view of the mold built according to the simulation results. The hatched parts represent the aluminum body. The pressure transducers are made of stainless steel, whose thermal conductivity is low compared to that of aluminum (see Table 3.2). The dimensions of the cavity are 320×35 mm.

3.6 EXPERIMENTAL SET-UP

The experimental set-up used for the determination of the transverse thermal conductivity consists of the previously designed mold equipped with an injection gate and a heating system.

3.6.1 The injection system

The injection system includes a resin container maintained under pressure. The container is connected to compressed air by a pressure reducer equipped with a pressure gauge. The compressed air pushes the resin during the injection. The mold and the container are connected by silicone pipes. Screws are used as injection port and vent in order to close the system once the injection is completed.

3.6.2 The heating system

For the measurement of the transverse thermal conductivity, a uniform heating is applied on the top and bottom surfaces of the mold. The heating cartridges are placed in the mold as shown in Figure 3.13. The heating is controlled by a *Davis Control* system (programmable controllers CAL 9500P and readers CAL3300) and monitored by the CALgrafix software. Thermocouples of type K with a diameter of 50 μm were used for the temperature measurement. They are slipped between the folds of the reinforcement in order to be maintained in the desired positions. The wires of the thermocouples are inserted through a hole bored within the frame of the mold. This hole is sealed to avoid leakage of the injected resin. The temperature is recorded by the National Instruments

card NI Scxi-1000 with the data acquisition software Labview [17], which can process simultaneously signals from up to 7 thermocouples.

3.7 EXPERIMENTAL PROTOCOL

The resin used is the AOC T-590 preheated to 40°C in a bath (Brookfield TC200) in order to decrease its viscosity before injection. The mold and the fibers are also preheated to 40°C. A quantity of 1.5% in mass of a catalyst of type Norox Pulcat-A is added prior to injection. The resin is degassed using a vacuum pump right before it is injected. The inlet pressure was maintained at 103 KPa throughout the injection. Before the injection the mold and its components (injection system, vent...) must be coated with two layers of sealing agent and five layers of Frekote, a demolding agent. The same procedure is applied to the joints in order to facilitate cleaning of the mold and its components. All the components are assembled in the mold and the thickness of the cavity is adjusted with the screws until the desired thickness is reached.

The thermocouples are manufactured with a specific welding machine intended for low diameter wires. They are inserted in the cavity through the hole bored within the frame of the mold. Three thermocouples were placed between the layers of reinforcement until the desired thickness is reached. Finally, the mold is closed carefully to ensure that the joint separating the frame and the top plate remains in its groove. At the end of injection, the temperature of the mold is increased to accelerate the cure of the part. The temperature of the mold is increased from 40°C to 95°C with a heating rate of 5°C/min and then kept at 95°C during 25 minutes. For post-curing, the temperature of the mold is increased to 115°C with the same heating rate and kept constant for 15 minutes before decreasing it to 25°C. For the measurement of transverse thermal conductivity, the temperature of the mold is initially fixed at 30°C during 15 minutes to ensure an

isothermal state of the composite and then increased to 180°C with a heating rate of 4°C/min and kept at 180°C during 15 minutes. For the resin system considered here, it was not necessary to heat at a higher temperature. Note that the final mold temperature of 180°C lies within the range of the heat transfer numerical simulations up to 195°C reported in section 3.5.1.

The fiber volume content for all the experiments performed is equal to 61%. Knowing the superficial density ρ_{surf} of each layer in the stack, the number of layers n introduced in the stack, the volumetric density ρ_{vol} of the fiber and the thickness h of the stack, the fiber volume content can be determined using the following equation:

$$V_f = \frac{\rho_{\text{surf}} \times n}{\rho_{\text{vol}} \times h} \times 100 \quad (5)$$

3.8 RESULTS AND DISCUSSION

Figure 3.14 shows the temperature measured by the three thermocouples for the cured composite. The two thermocouples located near the boundaries do not give the same values, since they are not located at the same distances from the surfaces of the mold. These recorded temperatures are used as boundary conditions in the program that identifies the thermal conductivity by the inverse method. The thermal conductivity dependence of the cured composite material as a function of temperature is displayed in Figure 3.15. The thermal conductivity changes almost linearly with temperature. A linear regression gives:

$$\lambda_{\perp}(T) = 3.10^{-4}T + 0.4168 \text{ (W/mK) } (T \text{ in K}) \quad (6)$$

The thermal conductivity of the cured composite can be deduced from the resin thermal conductivity using the model of Springer and Tsai [18]. This model relates for unidirectional composites the transverse thermal conductivity of the composite to the thermal conductivities of the resin λ_m and fibers λ_f and the fiber volume ratio v_f as follows:

$$\lambda_{\perp} = \lambda_m \frac{(1 + v_f) \lambda_f + (1 - v_f) \lambda_m}{(1 - v_f) \lambda_f + (1 + v_f) \lambda_m} \quad (7)$$

The thermal conductivity of the cured resin is measured. As depicted in Figure 3.16, the experimental set-up was designed to hold the thermocouples at given positions across the thickness of the cavity during the injection. Three thermocouples were fixed with adhesive on this part, which is made of the same resin (polyester). The part is placed in the center of the mold where the thermal conductivity is to be identified. The resin is then injected and the thermocouples are impregnated by the resin. After curing of the resin, the thermal cycle is started. The temperature of the mold is increased from 30°C to 180°C with a rate of 4°C/min. Figure 3.17 shows the temperature distribution in the thickness of the cured resin. These recorded temperatures are used in the identification code of thermal conductivity using the inverse method and the results are shown in Figure 3.18.

Considering that the thermal conductivity of the glass mat is equal to $\lambda_f = 1.3 \text{ W/mK}$ [19], the thermal conductivity of the composite can be estimated using equation (8) and compared to the experimental value. The comparison between the

experimental transverse thermal conductivity of the cured composite and the one derived from Springer and Tsai model is shown in Figure 3.19. Since the experiments do not take into account the binder in the fiber bed, nor the eventual presence of air bubbles, a difference of about 4,5% exist between experimental and numerical (see annex III).

3.9 CONCLUSION

The transverse thermal conductivity of a composite material was determined in an especially designed multi-functional mold by inverse thermal analysis from the measurement of the temperature evolution in time at three locations through the thickness of a composite sample. The mold has an adjustable cavity depth to accommodate different stacking sequences and composite thicknesses so as to allow easy testing of a series of different fiber volume contents. It is equipped with controlled heating cartridges and cooling channels to monitor temperature and pressure during resin injection and cure. With these characteristics, the mold can be configured to measure the thermal conductivity of the composite structure in the transverse direction.

Numerical simulations of heat transfer were performed in order to set the dimensions of the mold. It was verified that the central region is less affected by the presence of the pressure sensors which behave as heat sinks. Therefore it was found adequate to perform the temperature measurements in this region where the unidirectionality of heat transfer is ensured as required by the definition of the direct problem. Three virtual sensors were placed in the geometrical model at the same position as thermocouples. Starting from a known composite transverse thermal conductivity, the temperature field is calculated in the mold and in the composite. The evolution of temperature in time at the three sensor

locations predicted by the numerical simulation was then used by the inverse analysis algorithm to identify the transverse thermal conductivity of the cured composite.

Using the model of Springer and Tsai the transverse thermal conductivity of the composite was deduced and compared with the experimental value. The comparison gives a satisfactory results and the experimental device was validated to measure the transverse thermal conductivity of composite materials.

3.10 ACKNOWLEDGEMENTS

The authors would like to thank F. Lebel for his support on the inverse method and to perform the experimental work. They are grateful to the *Network of Centers of Excellence* Auto 21 and Ford Motor Co. for their financial support. The contributions of the *National Science and Engineering Research Council of Canada* (NSERC) and *Fonds Québécois de Recherche sur la Nature et la Technologie* (FQRNT) to develop the characterization mold are also gratefully acknowledged.

3.11 REFERENCES

- [1] Yao L.S. (1982). Heat Transfer in Porous Media, *American Society of Mechanical Engineers, New York*.
- [2] Giaretto V. and Torchio M.F. (2004). Two-Wire Solution for Measurement of the Thermal Conductivity and Specific Heat Capacity of Liquids: Experimental Design, *International Journal of Thermophysics*, vol. **25**, No. 3, pp. 679-699.
- [3] Wakeham W.A. and Assael M.J. (1999). Thermal Conductivity Measurement, *The Measurement, Instrumentation and Sensors Handbook*, Webster J. G. editor. CRC Press LLC.
- [4] Laurent J.P. (1991). An Estimation Model for The Dry Thermal Conductivity of Autoclaved Aerated Concrete, *Materials and Structures*, **24** (141), pp. 221-226.

- [5] Oms J.L. (1991). Identification of Thermal Parameters of Reactive and Deformable Porous Medium – Gas – Solid Chemical Heat-Pumps Application, *Revue Générale de Thermique*, **30** (354-55), pp. 394-400.

- [6] Degiovanni A., Batsale J.C., Maillet D. (1996). Mesure de la Diffusivité Longitudinale de Matériaux Anisotropes: Panorama des Techniques Développées au LEMTA, *Revue Générale de Thermique*, **35**, pp. 141-147.

- [7] Jarny, Y. (2003). The Adjoint Method to Compute the Numerical Solutions of Inverse Problems, *Inverse Engineering Handbook*. Woodbury K.A. editor. CRC Press LLC.

- [8] Richer G. R. (1981). An Inverse Problem for the Steady State Diffusion Equation, *SIAM J. Appl. Math.* **41** (2), 210-221.

- [9] Cheng-Hung, H., Jan-Yuan, Y. (1995). An Inverse Problem in Simultaneously Measuring Temperature-Dependent Thermal Conductivity and Heat Capacity, *Int. J. Heat Transfer*, vol. **38**, No. 18, pp. 3433-3441.

- [10] Menge, H., Trochu, F., Millischer, A., Sobotka, V. (2002). An experimental device and an inverse method to determine the thermal conductivity of a fiber reinforced composite as a function of temperature and state of cure, *4th Canada-Japan Workshop on Composites*, Sept. 19-21, Vancouver, Canada.

- [11] Bailleul J.-L., Sobotka V., Delaunay D., Jarny Y. (2003). Inverse Algorithm for Optimal Processing of Composite Materials, *Composites: Part A*, **34**, pp. 695-708.

- [12] Jauffres D. (2002). Conception d'une Presse Expérimentale de Moulage de Pièces Composites par le Procédé RTM Dédicée à des Mesures de Conductivité Thermique, *rapport de stage, INSA de Lyon, École Polytechnique de Montréal.*
- [13] Geuzaine C. Remacle J.F. GMSH “*Mesh Generation Freeware*”, <http://www.geuz.org/gmsh>.
- [14] Pam Rtm. Users Guide, ESI-Group, <http://www.esi-group.com>.
- [15] Sobotka, V. (2001). Détermination des Paramètres Thermophysiques et Cinétiques d'une Résine Polyester Insaturée, *Rapport de Stage de Fin d'Etudes, Ecole Polytechnique Montréal.*
- [16] I-DEAS. (2002-2003). 3D Graphs and Calculus Software, *Developer of Graphing Software for Use on Computers and Graphing Calculators*. Copyright © 2002-2003 by Bright Ideas Software™.
- [17] National Instruments LabVIEW 6.0. Copyright 2000 National Instruments.
- [18] Farmer, J.D., Covert, E. (1996). Thermal Conductivity of a Thermosetting Advanced Composite During its Cure, *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*, vol. **10**, No 3.
- [19] www.matweb.com.

3.12 LIST OF TABLES

Table 3.1. Thermophysical properties of materials used by Jauffres [8] for the initial mold

	Thermal conductivity (W/mK)	Specific heat (J/Kg.°C)	zone
insulator	0.08	1200	1
composite material	0.3	1300	4
steel	15	470	3
aluminum	237	900	2

Table 3.2. Thermophysical properties of materials used for the actual mold

	Density (kg/m3)	Thermal conductivity (W/mK)	Specific heat (J/Kg.°C)
aluminum	2700	237	900
steel	8000	15	470
rubber	1190	0.16	2000
composite material	1835	0.3	1400

3.13 LIST OF FIGURES

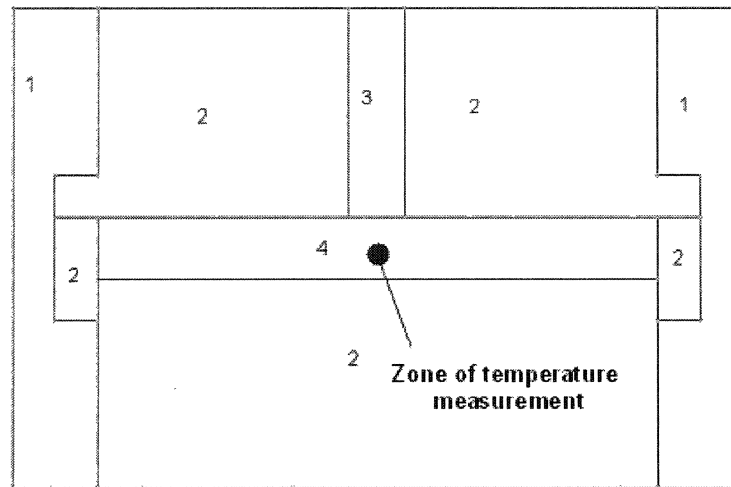


Figure 3.1: Cut view along the vertical planes of symmetry of the mold designed by Jauffres [9]

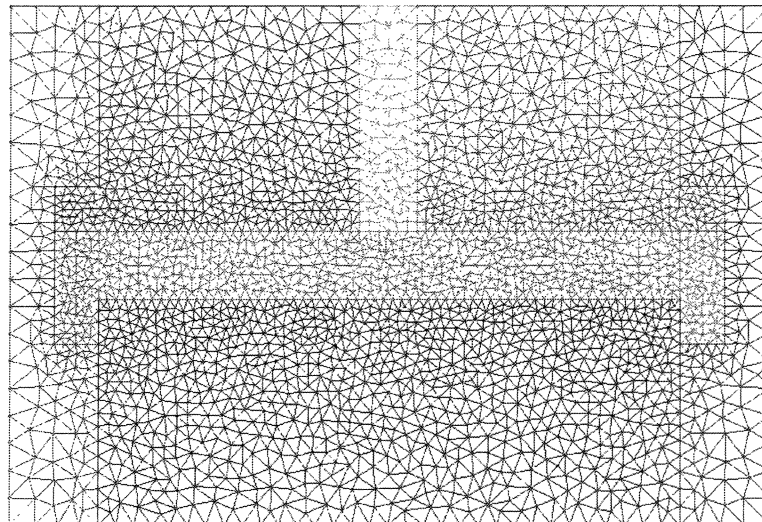


Figure 3.2: Mesh of the vertical cut view of the mold

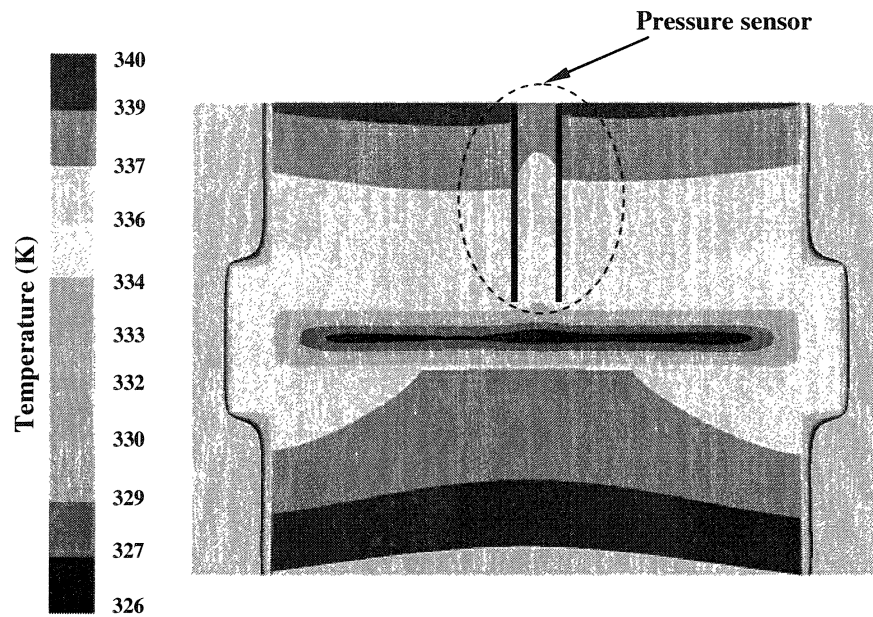


Figure 3.3: Temperature distribution in the 100×100 mm square mold with a pressure sensor in the middle of the cavity

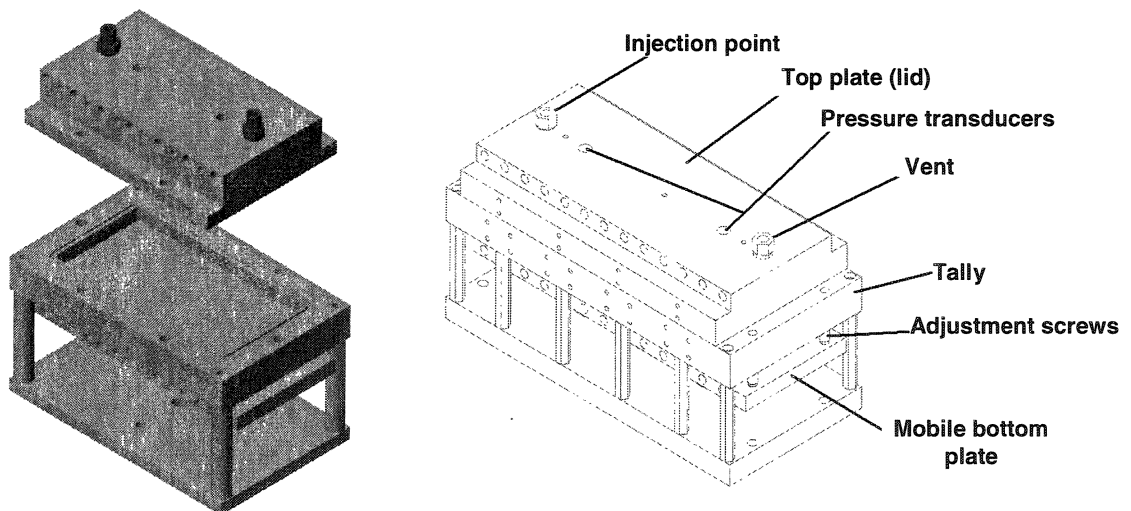


Figure 3.4: Mold assembly

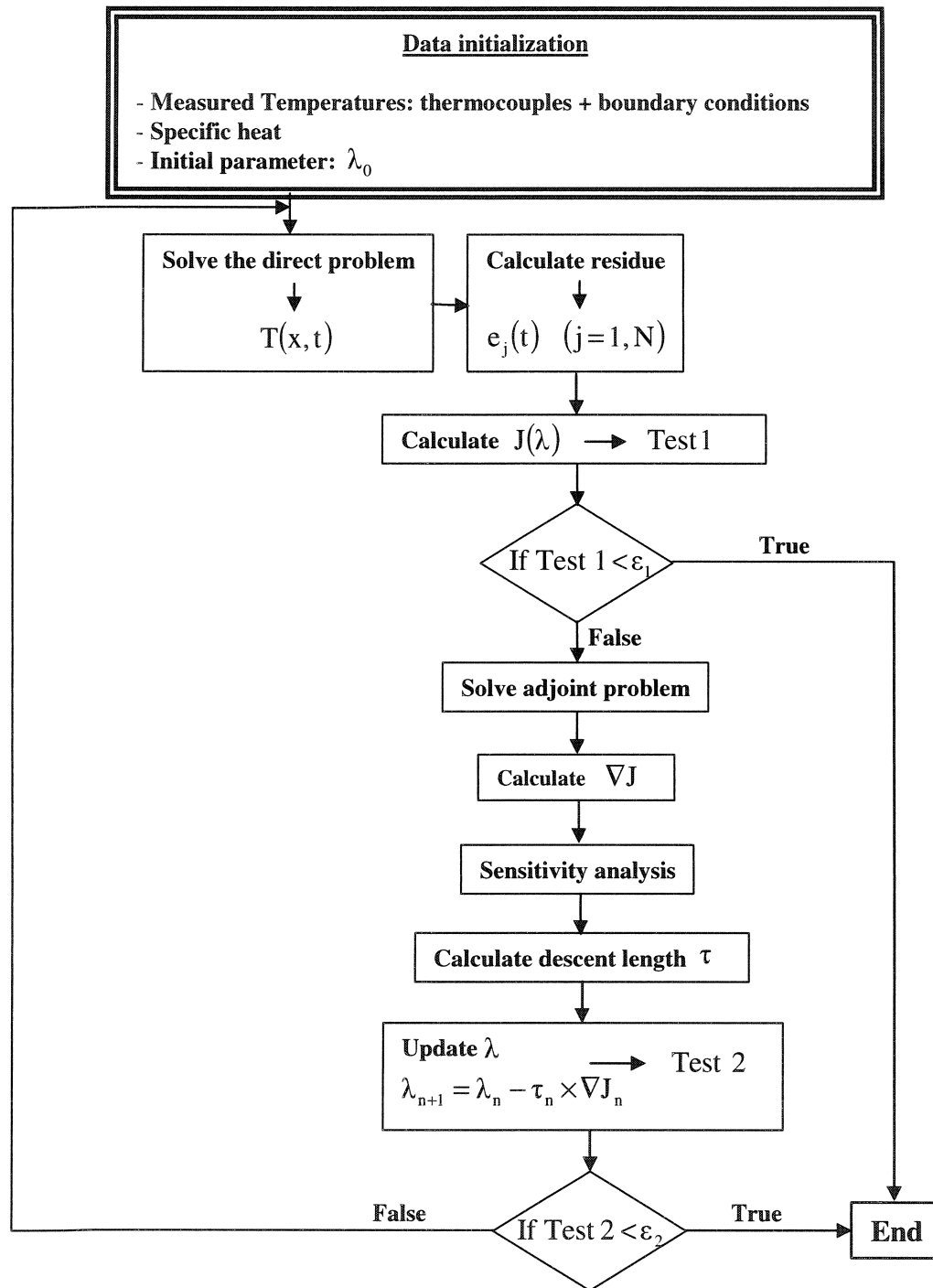


Figure 3.5: Flow chart of the inverse method

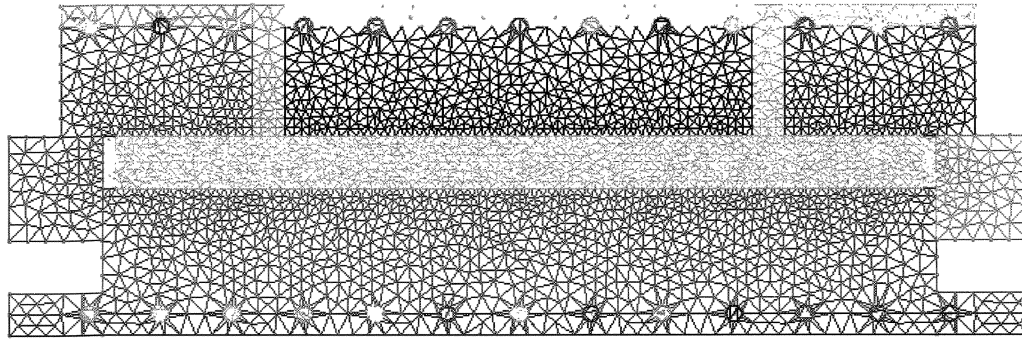


Figure 3.6: Mesh of the characterization mold

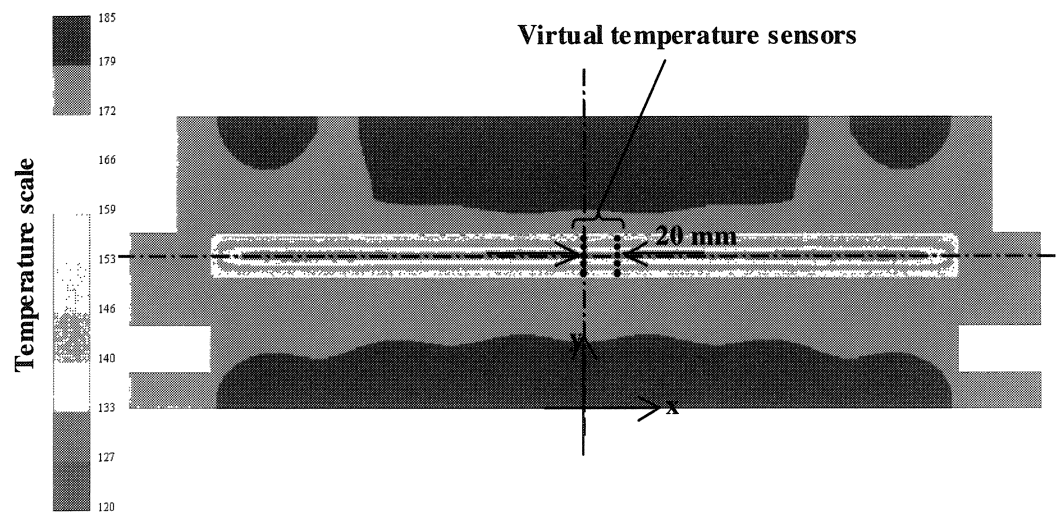


Figure 3.7: Temperature distribution in the mold after 941 sec

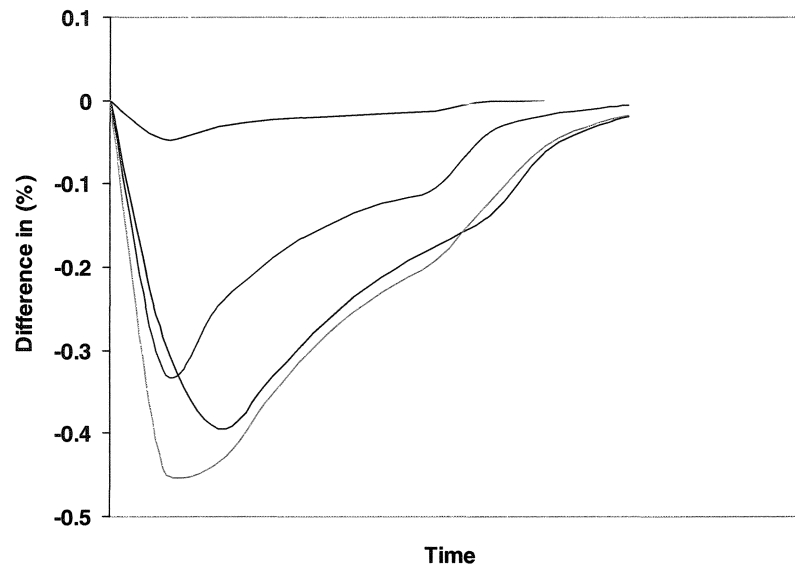


Figure 3.8: Temperature differences between sensors located at the same depth

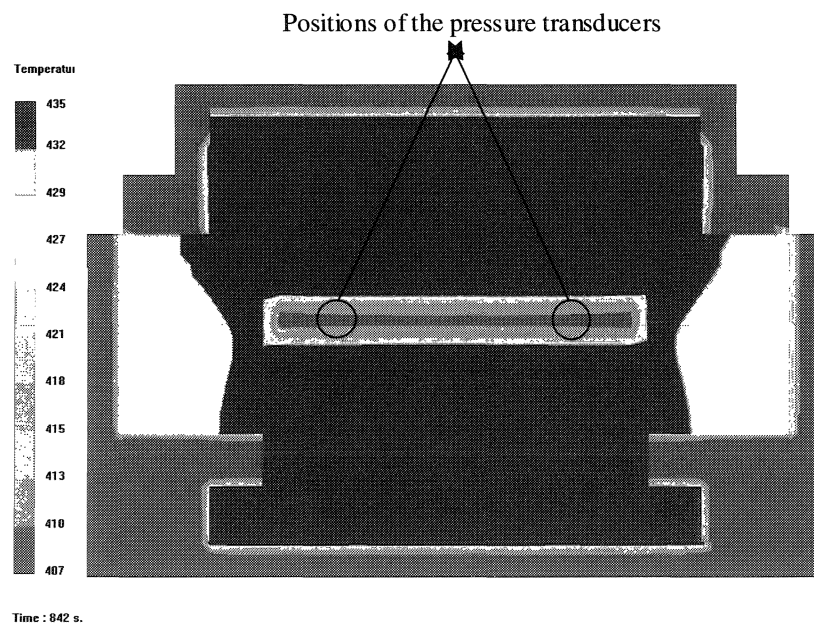


Figure 3.9: Temperature distribution in the mold (horizontal middle section)

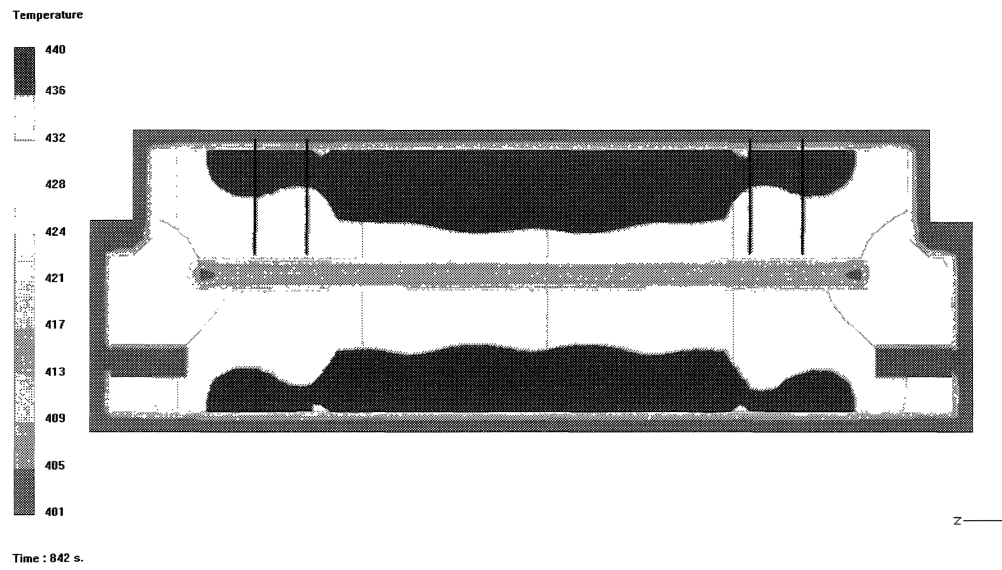


Figure 3.10: Temperature distribution in the characterization mold (vertical section)

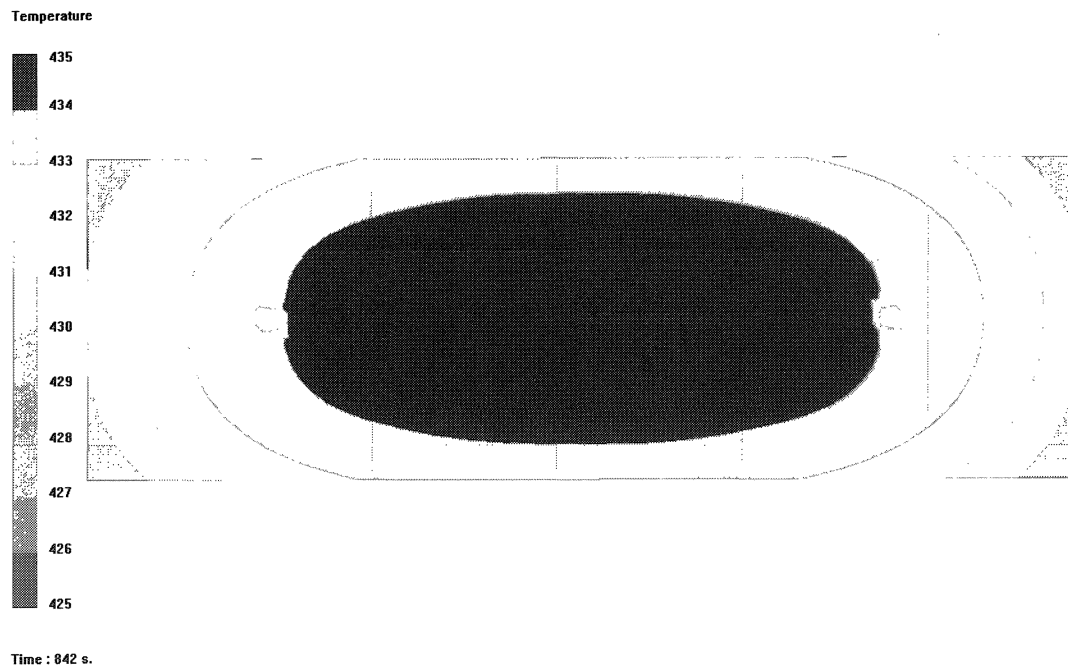


Figure 3.11: Horizontal temperature distribution at the interface between the composite sample and the characterization mold

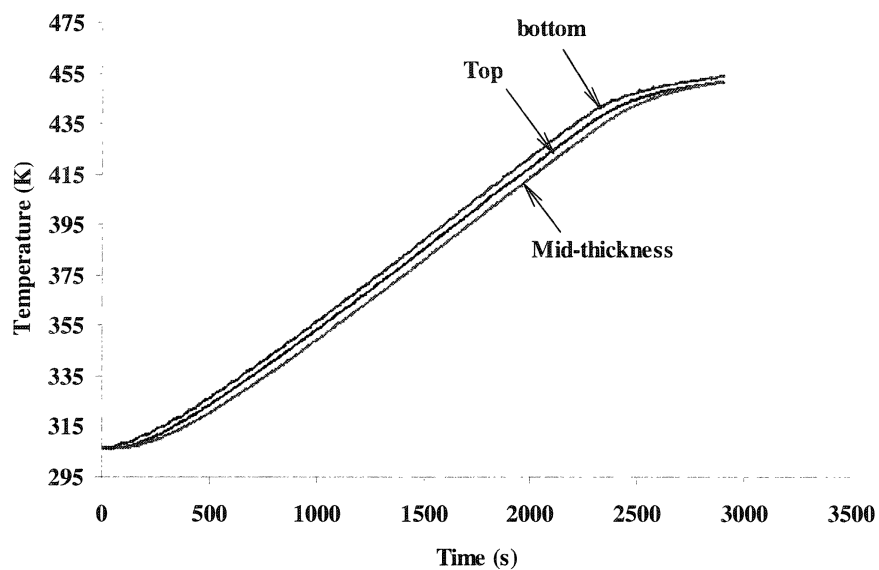


Figure 3.14: Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured composite during heating

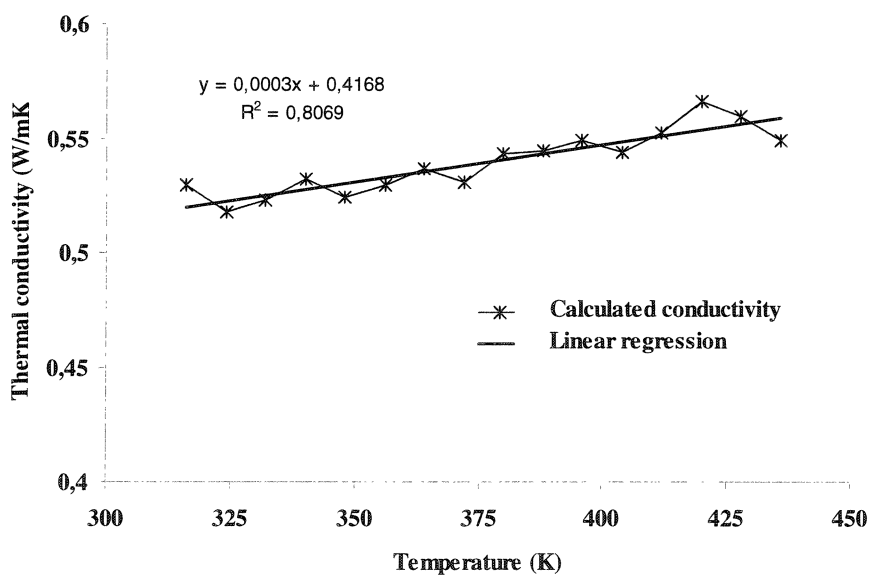


Figure 3.15: Evolution with temperature of the transverse thermal conductivity of the cured composite

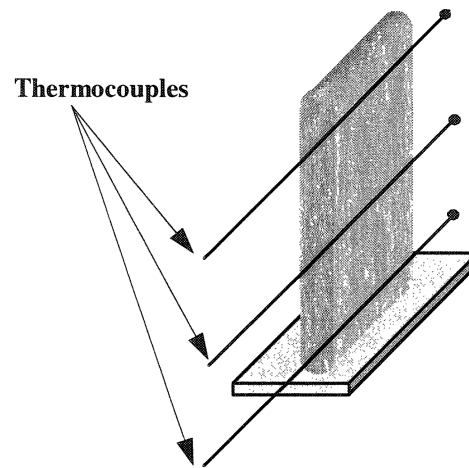


Figure 3.16: Experimental set-up designed to hold thermocouples

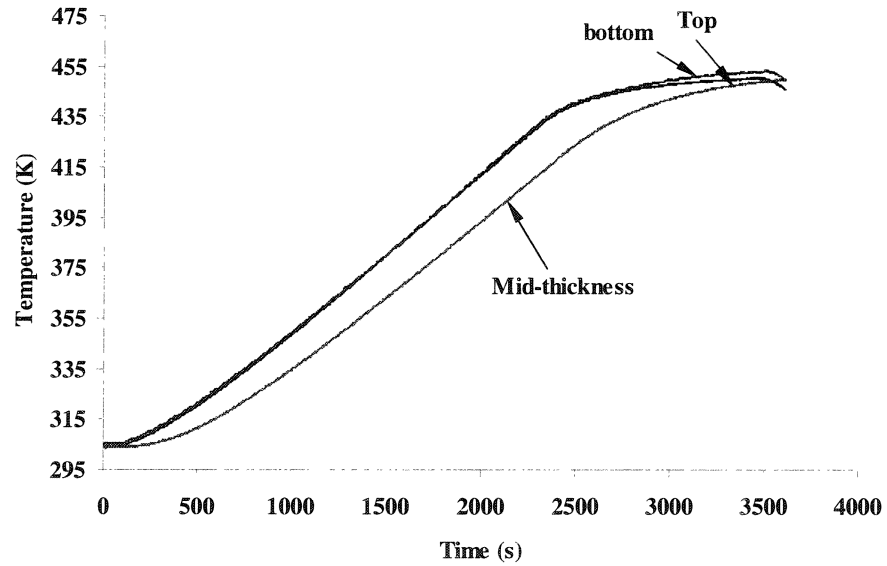


Figure 3.17: Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured resin during heating

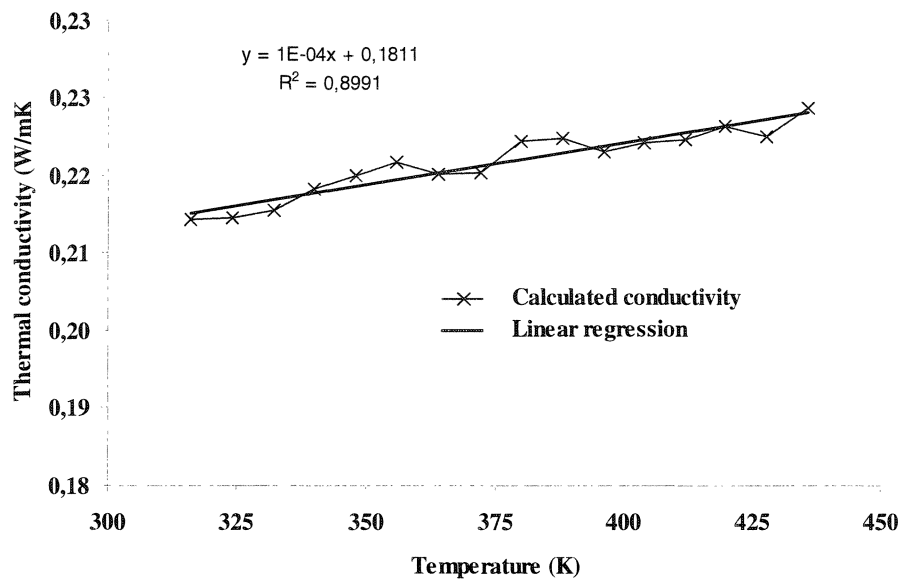


Figure 3.18: Evolution with temperature of the transverse thermal conductivity of the cured resin

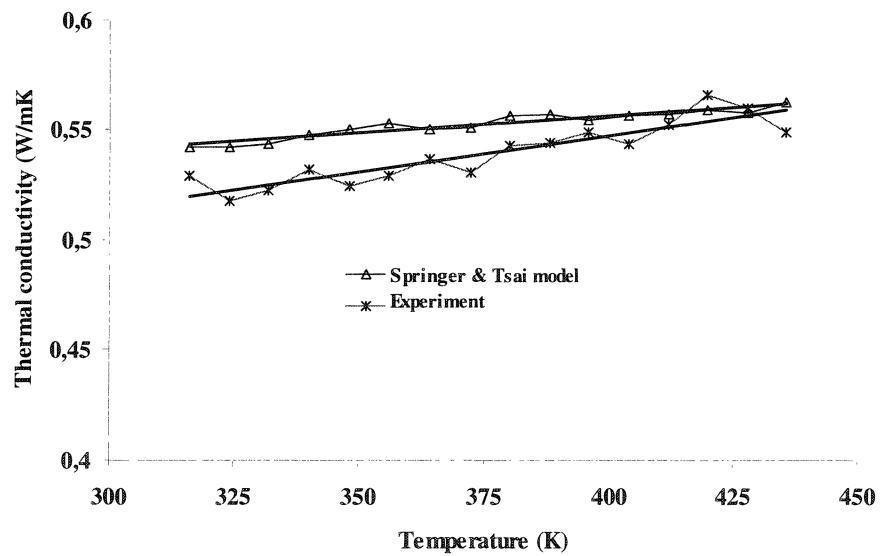


Figure 3.19: Comparison between experimental transverse thermal conductivity of the cured composite and the one derived from Springer and Tsai model

CHAPITRE 4

DEVELOPMENT OF A CHARACTERIZATION MOLD TO MEASURE THE IN-PLANE THERMAL CONDUCTIVITY OF A COMPOSITE MATERIAL BY INVERSE ANALYSIS

B. Assaf and F. Trochu*

Applied Research Center on Polymer (CRASP)

Department of Mechanical Engineering, École Polytechnique de Montréal

Station «Centre-Ville», H3C 3A7, Canada

4.1 ABSTRACT

In the present work, an inverse analysis of the heat conduction phenomenon is carried out to estimate the in-plane thermal conductivity of a composite material. A specific mold was designed to produce planar parts by resin transfer molding (RTM) and allows for appropriate measurement of the temperature of the cured composite. The mold is equipped with controlled heating and cooling devices and has an adjustable cavity depth to accommodate various experimental configurations. Numerical simulations were performed to determine an optimal configuration for the heating system in order to ensure a unidirectional heat transfer in the composite part. The considered composite is made out of unsaturated polyester resin and unidirectional glass fibers. A heating and cooling cycle is applied at the bottom and top surface of the chosen sample. The thermal conductivity is deduced from transient temperature measurements given by thermocouples positioned at three chosen locations following the fibers direction. The inverse analysis algorithm is initiated by solving the direct problem defined by the one-dimensional transient heat conduction equation using a first estimate of the thermal

conductivity. Measured temperatures through the thickness of the composite and the calculated temperatures are then used to predict the in-plane thermal conductivity. The integral in time of the square distance between measured and predicted values is considered as the criterion to be minimized in the inverse analysis. The same methodology was carried out to estimate the thermal conductivity of the cured resin. Using the rule of mixtures, the in-plane thermal conductivity was deduced and compared with the experimental value.

4.2 INTRODUCTION

In the composite materials industry, RTM has been widely adopted as the main process to manufacture parts. In order to increase the process yield and ensure the best possible parts quality, a good control of the thermal aspects of the process is required. The temperature evolution during filling or cure plays an important role in defining the parts characteristics. It is therefore important to consider the material behavior under the effect of thermal loads and the influence of the temperature on the material properties such as the specific heat and the thermal conductivity.

Classical techniques to measure the thermal conductivity are grouped in two main categories, namely: the steady state techniques and the transient techniques. The steady state techniques are usually based on parallel plates configuration such as the guarded hot plate method [1]. However these methods are inconvenient if the steady state is reached only after a long period. Transient techniques such as the method of the "shock probe" [2,3] and the flash method [4] overcome this issue but can be used only if the properties of the material do not depend on temperature, otherwise only a rough estimation can be expected. These methods are therefore not appropriate for high performance composites, of which material properties vary with temperature and degree

of cure. The goal of this investigation is to devise a more accurate approach, based on inverse thermal analysis to measure the in-plane thermal conductivity of a composite material made out of an unsaturated polyester resin and unidirectional glass fibers.

It has to be noted that all these techniques make use of the Fourier's law of conduction and therefore assume proportionality between the heat flux across a unit area and the temperature difference over a chosen distance. Regarding composite materials, the measured thermal conductivity is not the intrinsic property of any of its components but rather an effective value [1]

A mold that produces rectangular plates by RTM was especially designed for the present work. A thermal analysis of the mold using numerical simulations was carried out to determine the appropriate dimensions as well as the positioning of the pressure sensors [5] needed to control the injection process. The final design allows measuring the temperature of the composite material of interest using thermocouples carefully inserted into the mold cavity. A series of numerical simulations was performed to set the best heating configuration. The heat transfer has to be unidirectional in the zone that contains the thermocouples to allow the identification of the in-plane conductivity using the inverse method [6]. Knowing the evolution of the boundary conditions in time, i.e., the top and bottom surface temperatures of a specific sample, the in-plane thermal conductivity can be deduced from transient temperature measurements at three given positions through the thickness of the part.

The experimental validation of the inverse methodology is carried out here for the cured composite only, but the same approach can be clearly applied to the raw composite. The thermal conductivity λ can then be obtained as a function of temperature T and degree of cure α by the rule of mixture:

$$\lambda(T, \alpha) = (1 - \alpha)\lambda_{\text{cured}}(T) + \alpha\lambda_{\text{raw}}(T) \quad (1)$$

where λ_{raw} , λ_{cured} denote the thermal conductivities of the raw, cured composite, respectively.

4.3 MOLD DESCRIPTION

As depicted in Figure 4.1, the mold is composed of two main parts. It has been designed to produce composite planar parts of different thicknesses. The height of the cavity where the resin is injected can be adjusted with the mobile bottom plate which is provided with four screws positioned at its corners. Two other screws located on the top surface of the mold are used as injection port and vent. The mold made out of aluminum can be heated or cooled uniformly and resists to process temperatures up to 200°C as well as to the injection pressure (138 KPa). The high thermal conductivity of aluminum allows a uniform temperature distribution in the mold. This means that a unidirectional heat transfer takes place through the thickness of the composite. The mold is insulated on all its lateral sides and on the top and bottom faces in order to minimize heat losses. Pressure and temperature sensors are placed in the mold in order to measure the pressure close to the injection port and vent and to record the evolution of temperature in the mold cavity.

Figure 4.2 shows a vertical cut of the optimal mold design, according to the results of numerical simulations. The hatched parts represent the aluminum body of the mold. The pressure sensors positioned at 79 mm from the mold edge are made out of stainless steel. The length and the width of the cavity are 320mm and 110mm respectively while the maximum cavity thickness allowed by the mobile plate is 35mm. The heating system is composed of a series of heating cartridges placed along the surface of the top cover and the cavity. A rubber seal is placed between the cover and the base plate to avoid the leakage of the resin.

4.4 INVERSE METHOD

The inverse method adopted is the standard unidirectional version based on an optimization algorithm that consists of the following main steps. Using an initial guess of the thermal conductivity, the one-dimensional equation that governs the transient heat transfer by conduction is solved numerically through the thickness of the part. Then the temperature evolution at any point within the part is obtained. The calculated and experimentally measured temperatures at a given position through the thickness of the composite are used to integrate in time the least square error between predicted and measured values. An optimization procedure based on the gradient descent method is implemented to update the thermal conductivity by minimizing this criterion. The iteration is stopped once the error is lower than a given accuracy.

4.4.1 Solving the direct problem

The direct problem consists of solving numerically the one-dimensional transient heat conduction equation. The energy balance expressed in terms of the temperature T is written as:

$$\frac{\partial}{\partial x} \left[\lambda(T) \frac{\partial T}{\partial x} \right] = \rho C_p(T) \frac{\partial T}{\partial t}; \quad 0 < x < L \quad (2)$$

where the following parameters are defined for the composite material:

ρ	density (kg/m ³),
$C_p(T)$	specific heat (J/Kg °C),
$\lambda(T)$	thermal conductivity (W/mK),
L	length of the part (m),

Subjected to the following boundary conditions:

$$\begin{cases} T(0, t) = T_1(t) & t > 0 \\ T(L, t) = T_2(t) & t > 0 \\ T(x, 0) = T_0(x) & 0 < x < L \end{cases} \quad (3)$$

where $T_1(t)$ and $T_2(t)$ denote the temperatures at the top and the bottom boundaries of the part, while $T_0(x)$ represents the initial temperature field.

The temperature dependent specific heat $C_p(T)$ and the constant density ρ are assumed to be known. The specific heat is determined as a function of temperature by differential scanning calorimetry, so only the thermal conductivity $\lambda(T)$ of the composite material needs to be identified in equation (2).

For a number N of thermocouples set in the cavity, the least square criterion $J(\lambda)$ is expressed as:

$$J(\lambda) = \sum_{j=1}^N \int_{t=0}^{t_f} [T(x_j, t) - Y_j(t)]^2 dt \quad (4)$$

where t_f is the total time of the experiment, $Y_j(t)$ represents the temperature measured at point x_j , $1 \leq j \leq N$, and $T(x_j, t)$ is the temperature calculated at the same locations. The flow chart describing the inverse method is shown in Figure 4.3. The direct problem with an initial value of λ for the composite is solved numerically. The difference between the calculated temperature value and temperature measured experimentally is estimated at each location.

The functional $J(\lambda)$ expressed in equation (4) has to be minimized, subjected to the constraint represented by the ordinary differential equation of heat conduction (Equation 2). The thermal conductivity minimizing $J(\lambda)$ is identified here by the gradient descent method with Lagrange multipliers to account for the constraint (see Jarny [6]).

4.5 HEATING CONFIGURATIONS

To measure the in-plane thermal conductivity, the thermocouples should be placed in the direction of fibers and the heating must be carried out according to this direction, i.e., in the direction of the length of the composite sample. Several configurations are possible either by using the heating cartridges or a heater placed in the mold cavity.

These configurations are studied in detail by numerical simulation to verify that the heat transfer is unidirectional following the fibers direction. Meshes are built using the automatic meshing software GMSH [7] and simulations are carried out using PAM-RTM [8], a commercially available finite element analysis software. Table 4.1 indicates the properties of the materials used in the simulations. The thickness of the cavity is set to 20 mm for all the simulations.

4.5.1 Configuration 1

In this configuration (Figure 4.4), the composite plate is placed within the cavity of the mold in contact with a rectangular heater made of copper. An electrical resistance is glued on the external face of the copper part and the system is surrounded by Teflon plates for insulation. Figure 4.5 shows the mesh corresponding to this configuration. As it can be seen, the mesh is refined from the edges towards the center of the cavity where

the in-plane thermal conductivity of the composite part is to be determined. Simulations are performed with the heater subject to a progressive linear heating as a boundary condition. The heater increases the temperature from 25 to 195 °C with a ramp of 10°C/min. Figure 4.6 shows the temperature distribution in the mold after 2500 sec. It is observed that the region where the heat transfer is unidirectional is confined to the vicinity of the copper heater. Therefore it will be difficult to set up this configuration experimentally since the thermocouples have to be all inserted in this region.

4.5.2 Configuration 2

The simulation result given by configuration 1 shows that the temperature is constant at 43 mm from the heater. In order to obtain better temperature uniformity, the heating has to be extended to a larger area. In Figure 4.7 a new configuration is suggested. The heater is in contact with the length of the composite plate. Figure 4.8 shows the mesh for this configuration. The same heating ramp is applied during the numerical simulation. Figure 4.9 shows the temperature distribution in the mold after 2500 sec. The region where the heat transfer can be considered as unidirectional has been enlarged but still not enough for easy insertion of the thermocouples.

The two first configurations show that the composite sample has to be heated from two sides in order to increase significantly the region where the heat transfer is unidirectional. Two possible heating configurations can be adopted. The first consists of placing the samples between two copper heaters. The second configuration uses the heating cartridges to heat from the top and bottom surfaces of the mold cavity.

4.5.3 Configuration 3

The purpose of this configuration is to increase the effectiveness of the heating. The composite part is therefore placed between two copper heaters in the mold (Figure 4.10). Figure 4.11 shows the mesh generated for this configuration. Figure 4.12 depicts the temperature distribution in the mold after 2500 sec. The heat transfer is unidirectional over a larger zone of the composite part around the center of the mold where the in-plane thermal conductivity is to be identified.

4.5.4 Configuration 4

For this configuration, the fibers have a new positioning in the mold cavity (Figure 4.13). The sample will have to be placed so that the fiber direction is perpendicular to the length of the cavity. Figure 4.14 shows the new configuration and the corresponding mesh is depicted in Figure 4.15. Two sides of the sample are in contact with the top and bottom surfaces of the mold cavity while all the other sides are surrounded by Teflon plates for insulation. The temperature distribution in the mold after 2500 sec (Figure 4.16) shows that the heating is uniform and the results are equivalent to those of configuration 3.

Configuration 4 is more convenient since no additional heater is needed in the cavity and only the sample has to be prepared. Using this procedure the thermocouples are easily positioned according to the direction of the fibers since the unidirectionality prevails over the entire height of the sample.

4.6 EXPERIMENTAL SET-UP

The experimental setup used for the determination of the in-plane thermal conductivity by inverse analysis consists of the previously described mold equipped with an injection gate and a heating system corresponding to configuration 4.

4.6.1 The injection system

During the injection, compressed air pushes the resin from a container maintained under pressure to the injection gate through silicon pipes. The container is connected to compressed air by a pressure reducer equipped with a pressure gauge. Screws are used as injection port and vent in order to close the system once the injection is done.

4.6.2 The heating system

The heating cartridges placed in the mold (Figure 4.17) are used to apply a uniform heating on the top and the bottom surfaces of the mold controlled by a *Davis Control* system (programmable controllers CAL 9500P and readers CAL3300) and monitored by the CALgrafix software. The temperature is measured with thermocouples of type K having a diameter of 50 μ m. They are manufactured with a specific welding machine intended for low diameter wires. The thermocouples are slipped between the folds of the reinforcement in order to be maintained in the desired positions and their wires inserted through a hole bored within the frame of the mold. This hole is sealed to avoid leakage of the resin injected. The temperature acquisition is provided by the National Instruments card NI Scxi-1000 with the software Labview [17] which can record simultaneous signals from up to 7 thermocouples.

4.7 EXPERIMENTAL PROTOCOL

The resin used is the AOC T-590 preheated to 40°C in a bath (Brookfield TC200) in order to decrease its viscosity before injection. The mold and the fibers are also preheated to 40°C. A quantity of 1.5% in mass of a catalyst of type Norox Pulcat-A is added prior to injection. The resin is degassed using a vacuum pump right before it is injected. The inlet pressure was maintained at 103 KPa throughout the injection. Before the injection the mold and its components (injection system, vent...) must be coated with two layers of sealing agent and five layers of Frekote, a demolding agent. The same procedure is applied to the joints in order to facilitate cleaning of the mold and its components. All the components are assembled in the mold and the thickness of the cavity is adjusted with the screws until the desired thickness is reached.

Three thermocouples are placed horizontally and equally spaced (20mm) in the center of the mold through the thickness of the fibers. When the molding and the total polymerization of the resin are done, the part is demolded and cut following its length. The part obtained is then placed in the cavity so that the thermocouples are positioned vertically. Finally, the mold is closed carefully to ensure that the joint separating the frame and the top plate remains in its groove.

At the end of injection, the heating cycle shown in Figure 4.18 is started. The temperature of the mold is increased from 40°C to 95°C with a heating rate of 5°C/min and then kept at 95°C during 25 minutes. The same heating rate is applied during post-curing to increase the temperature to 115°C. Finally compressed air through the cooling channels is used to cool the mold until ambient temperature is reached.

After demolding, the thermocouples are disconnected from the data acquisition system. With an electrical saw, the zone including the thermocouples is cut. The new sample is

placed again in the mold with the fibers positioned following the vertical direction. The sides of the new rectangular sample are insulated by Teflon.

To measure the in-plane thermal conductivity, the temperature of the mold is initially fixed at 30°C during 15 minutes to ensure an isothermal state of the composite and then increased to 180°C with a heating rate of 4°C/min. The temperature is finally kept at 180°C during 15 minutes before cooling the mold to ambient temperature.

4.8 RESULTS AND DISCUSSION

Figure 4.19 shows the temperature measured by the three thermocouples for the cured composite. The two thermocouples close to the boundaries give almost the same temperature values since they are located at the same distances from the surfaces of the mold cavity. These recorded temperatures are used as boundary conditions in the program that identifies the thermal conductivity by the inverse method. The variations of the in-plane thermal conductivity of the cured composite with temperature are displayed in Figure 4.20. The thermal conductivity evolves almost linearly with temperature. A linear regression gives:

$$\lambda_{\perp}(T) = 5.10^{-5}T + 0.8588 \text{ (W/mK)} \quad (T \text{ in K}) \quad (5)$$

The thermal conductivity of the cured composite can be deduced from the thermal conductivity λ_m of the resin, the thermal conductivity λ_f of the fibers and the fiber volume content v_f using the rule of mixtures. as follows:

$$\lambda_{\text{Long}} = \lambda_m (1 - v_f) + \lambda_f v_f \quad (6)$$

Knowing the superficial density ρ_{surf} of each layer in the stack, the number of layers n introduced in the stack, the volumetric density ρ_{vol} of the fiber and the thickness h of the stack, the fiber volume content can be determined using the following equation:

$$v_f = \frac{\rho_{\text{surf}} \times n}{\rho_{\text{vol}} \times h} \times 100 \quad (7)$$

The fiber volume content for all the experiments performed is equal to 61%.

In order to apply the rule of mixtures, the thermal conductivity of the cured resin is also measured. As depicted in Figure 4.21, a small sample made of the same resin (polyester) is used to hold with adhesive the thermocouples at given positions across the thickness of the cavity during the injection. The sample is placed in the center of the mold where the thermal conductivity is to be identified. The resin is then injected and the thermocouples are impregnated by the resin. After curing of the resin, the experimental protocol followed to acquire temperature data for the cured composite is used for the cured resin. Figure 4.22 shows the temperature distribution in the thickness of the cured resin. These recorded temperatures are used in the identification code of thermal conductivity using the inverse method and the results are shown in Figure 4.23. The thermal conductivity of the cured resin is estimated as 0.22 W/mK.

Considering the thermal conductivity of the glass mat equal to $\lambda_f = 1.3 \text{ W/mK}$ [10], the thermal conductivity of the composite can be estimated using equation (7) and compared to the experimental value. The comparison between the experimental in-plane thermal conductivity of the cured composite and the one derived from the rule of mixtures is shown in Figure 4.24. Only a difference of about 0.2% exists between experiment and modeling.

4.9 CONCLUSION

An inverse thermal analysis was conducted to determine the in-plane thermal conductivity of a composite material. A multi-functional mold was designed to produce the composite parts as well as to allow the measurement of the samples temperature as required by the inverse method. The mold has an adjustable cavity depth and is equipped with controlled heating cartridges and cooling channels. Two pressure sensors are used to monitor the pressure during the injection. Numerical simulations were carried out to set the appropriate heating of the desired composite sample. Several configurations were suggested and the one leading to a unidirectional heat transfer in the region where the temperature has to be measured was selected.

An experimental protocol was followed to produce the planar composite part. A sample from the resulting part is used to measure the in-plane thermal conductivity. A heating is applied to the sample and the temperature recorded using three thermocouples previously positioned through the thickness. The in-plane thermal conductivity was estimated using the inverse method. The same experimental procedure and inverse analysis algorithm were used to obtain the thermal conductivity of the cured resin. Knowing the thermal conductivity of the fibers, the rule of mixtures was used to calculate the thermal conductivity of the composite. The value obtained differs with less than 0.2% from the experimental result.

4.10 ACKNOWLEDGMENTS

The authors are grateful to the *Network of Centers of Excellence* Auto 21 and Ford Motor Co. for their financial support. The contributions of the *National Science and Engineering Research Council of Canada* (NSERC) and *Fonds Québécois de Recherche sur la Nature et la Technologie* (FQRNT) to develop the characterization mold are also gratefully acknowledged.

4.11 REFERENCES

- [1] Wakeham W.A. and Assael M.J. (1999). Thermal Conductivity Measurement, *The Measurement, Instrumentation and Sensors Handbook*, Webster J. G. editor. CRC Press LLC.
- [2] Laurent J.P. (1991). An Estimation Model for The Dry Thermal Conductivity of Autoclaved Aerated Concrete, *Materials and Structures*, **24** (141), pp. 221-226.
- [3] Oms J.L. (1991). Identification of Thermal Parameters of Reactive and Deformable Porous Medium – Gas – Solid Chemical Heat-Pumps Application, *Revue Générale de Thermique*, **30** (354-55), pp. 394-400.
- [4] Degiovanni A., Batsale J.C., Maillet D. (1996). Mesure de la Diffusivité Longitudinale de Matériaux Anisotropes: Panorama des Techniques Développées au LEMTA, *Revue Générale de Thermique*, **35**, pp. 141-147.
- [5] Assaf B, Menge H., Sobotka V., Trochu F. Development of a Characterization Mold to Measure the Transverse Thermal Conductivity of a Composite Material by Inverse Analysis. *Submitted to the Journal of Reinforced Plastics and Composites*.

- [6] Jarny, Y. (2003). The Adjoint Method to Compute the Numerical Solutions of Inverse Problems, *Inverse Engineering Handbook*. Woodbury K.A. editor. CRC Press LLC.
- [7] Geuzaine C and Remacle J.F. GMSH “*Mesh Generation Freeware*”, <http://www.geuz.org/gmsh>.
- [8] Pam Rtm. Users Guide, ESI-Group, <http://www.esi-group.com>.
- [9] National Instruments LabVIEW 6.0. Copyright 2000 National Instruments.
- [10] www.matweb.com.

4.12 LIST OF TABLES

Table 4.1 Thermophysical properties of materials used in the numerical simulation

	Thermal conductivity (W/m.K)	Specific heat (J/kg.K)	Density (Kg/m ³)
aluminum	237	900	2700
Teflon	0.2	1172	1450
steel	15	470	8000
composite material	0.7	1400	1835

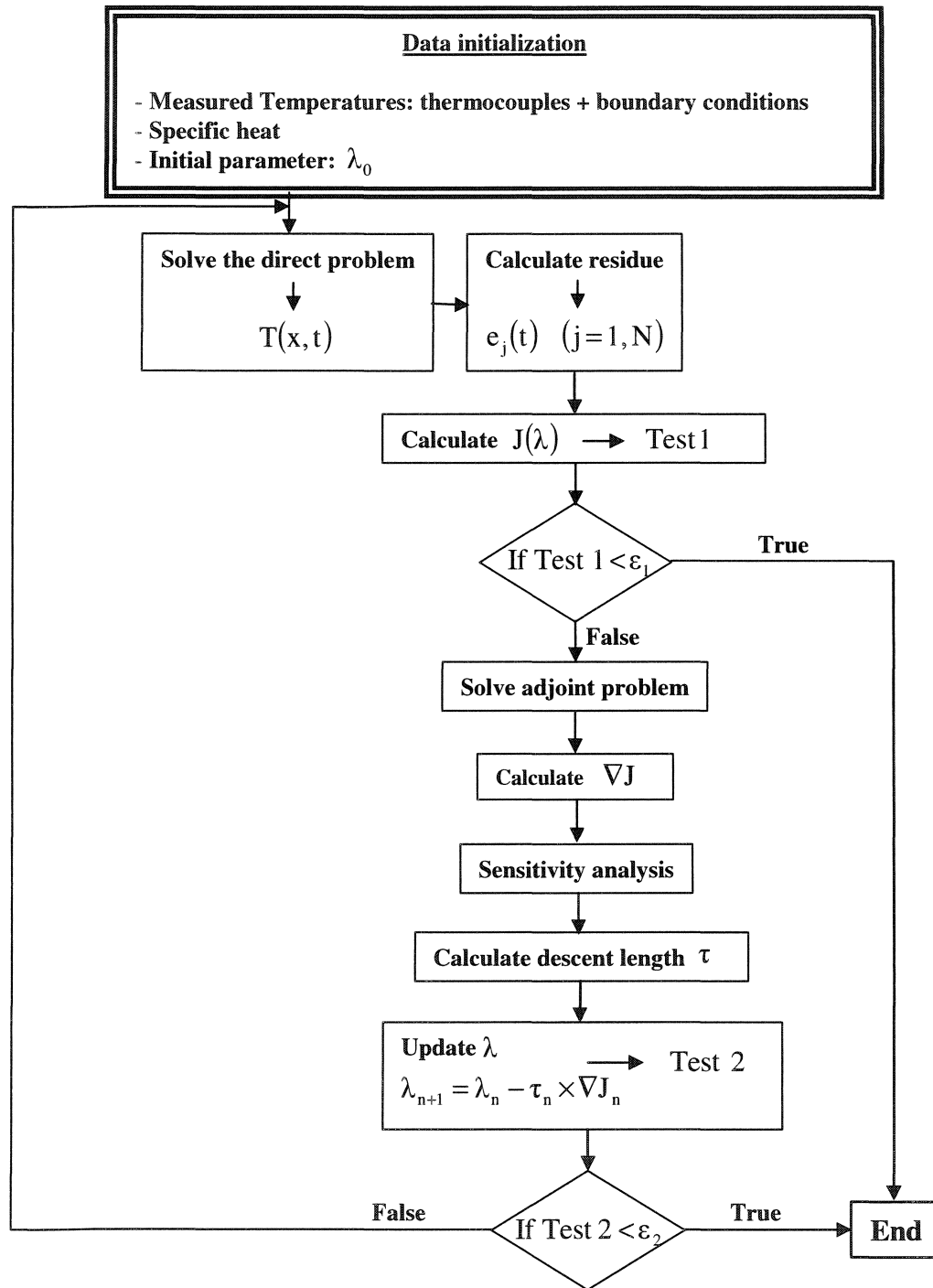


Figure 4.3: Flow chart of the inverse method

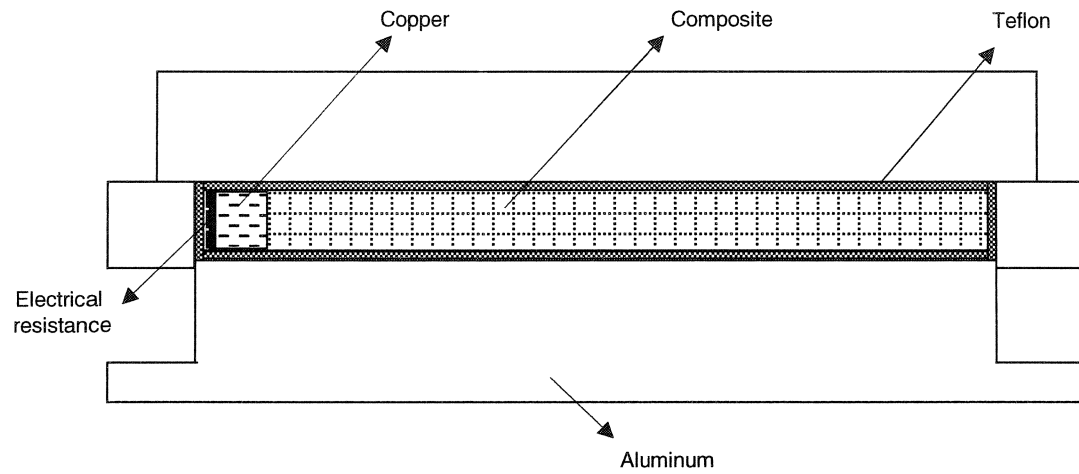


Figure 4.4: Rectangular heater in contact with the composite (configuration 1)

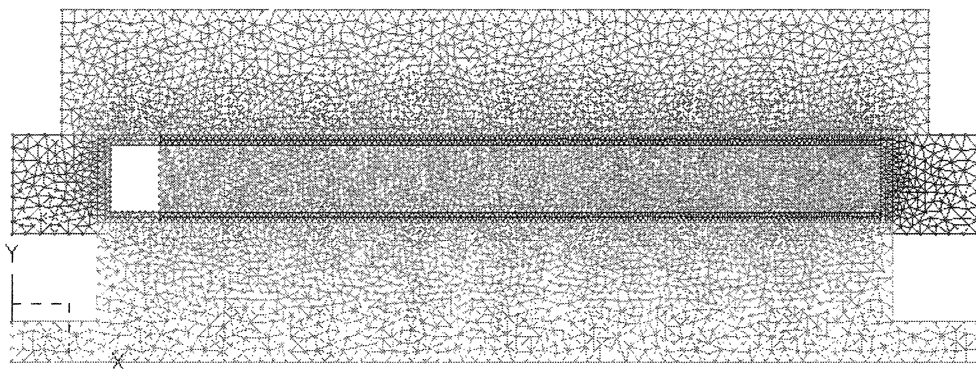


Figure 4.5: Mesh of the mold and cavity (configuration 1)

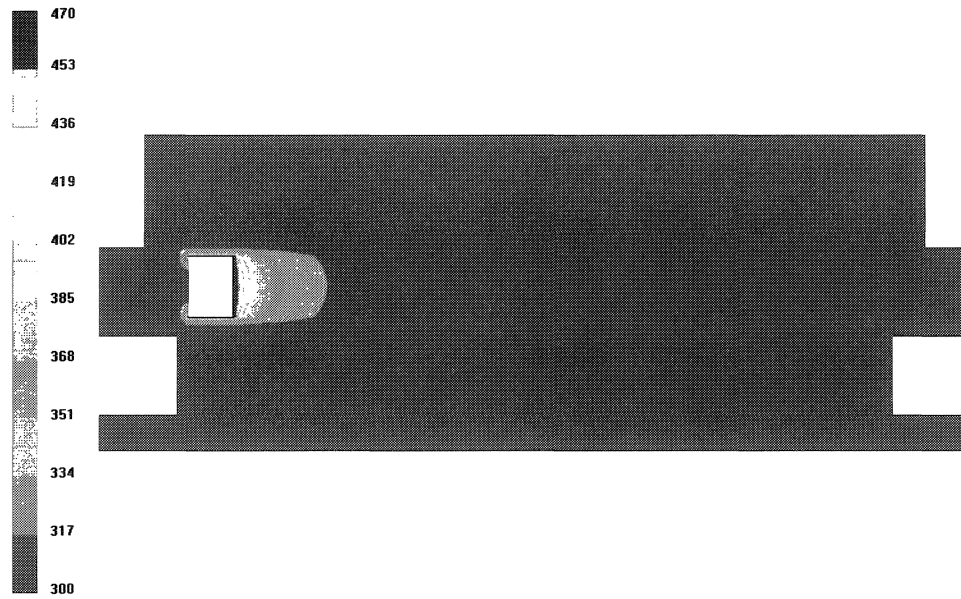


Figure 4.6: Temperature distribution in the mold after 2500 sec

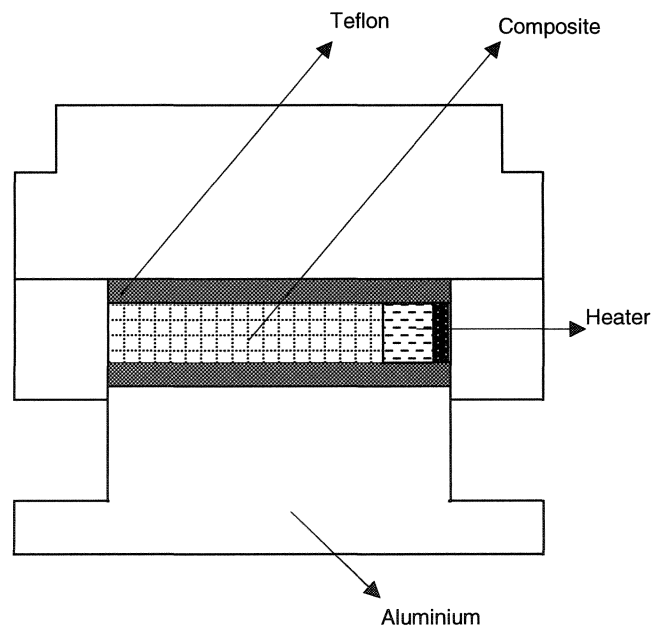


Figure 4.7: Heater in contact with the length of the composite (configuration 2)

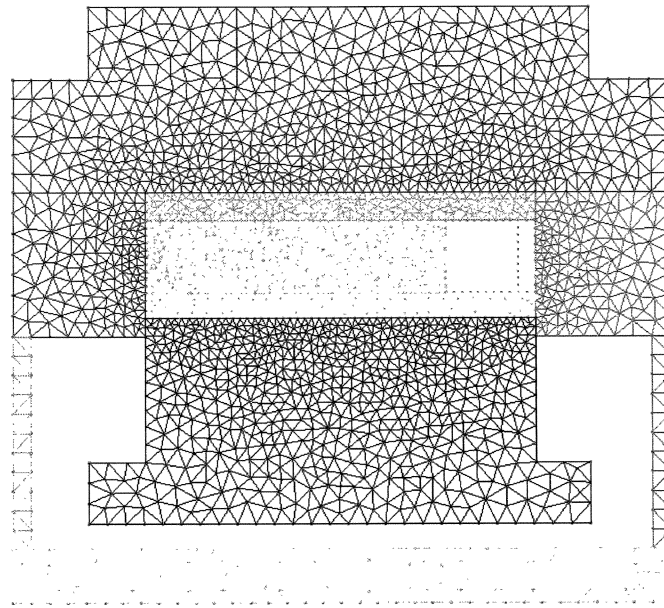


Figure 4.8: Mesh of the mold (configuration 2)

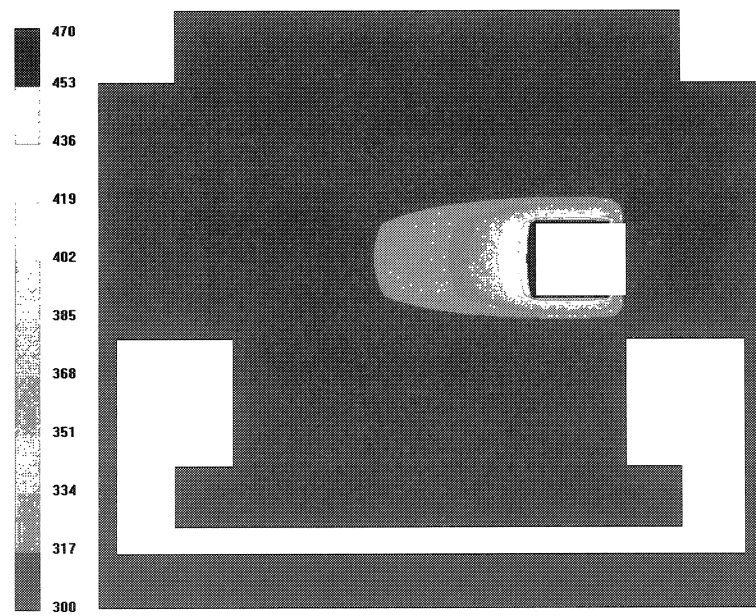


Figure 4.9: Temperature distribution in the mold after 2500 sec

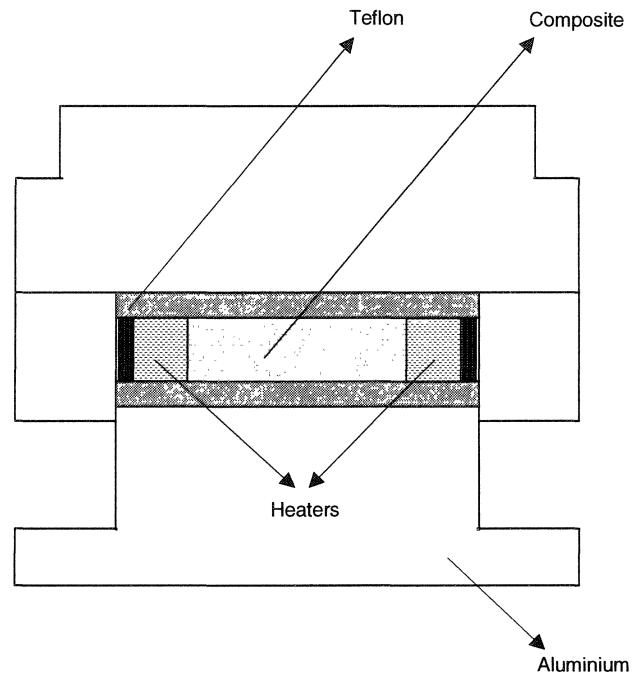


Figure 4.10: Composite placed between two heaters (configuration 3)

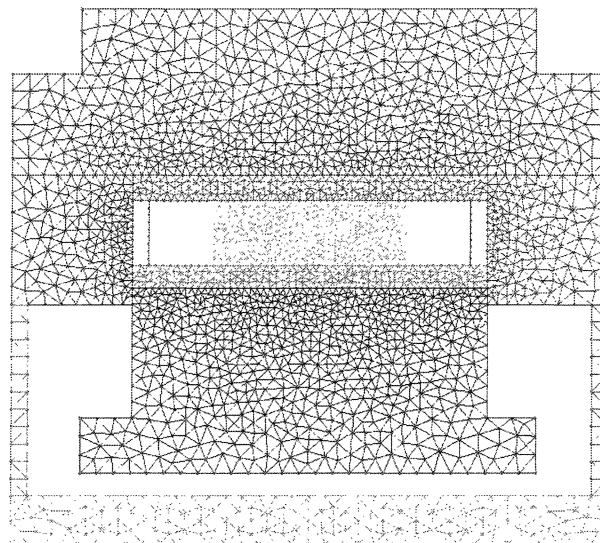


Figure 4.11: Mesh of the mold (configuration 3)

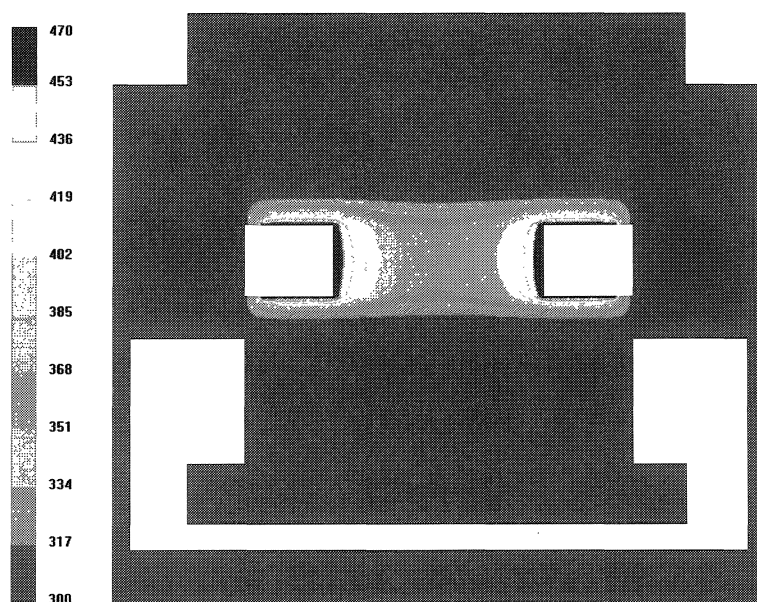


Figure 4.12: Temperature distribution in the mold after 2500 sec

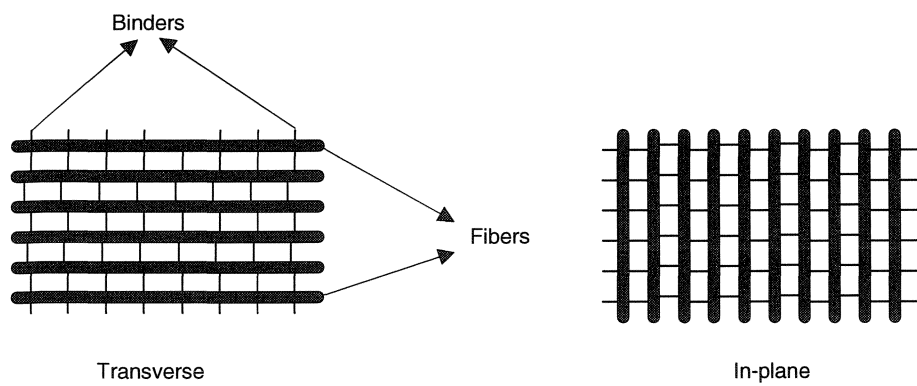


Figure 4.13: Fibers direction

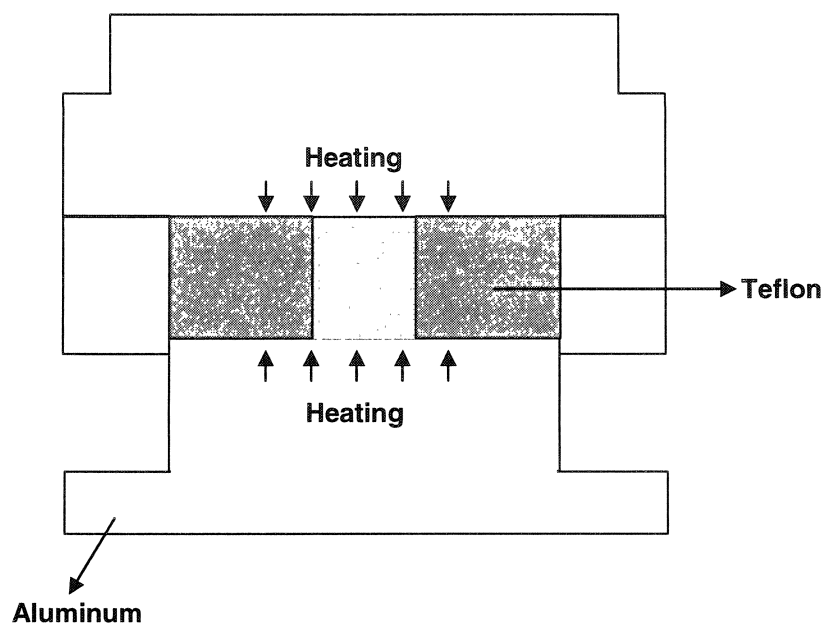


Figure 4.14: Sample heated from top and bottom surfaces

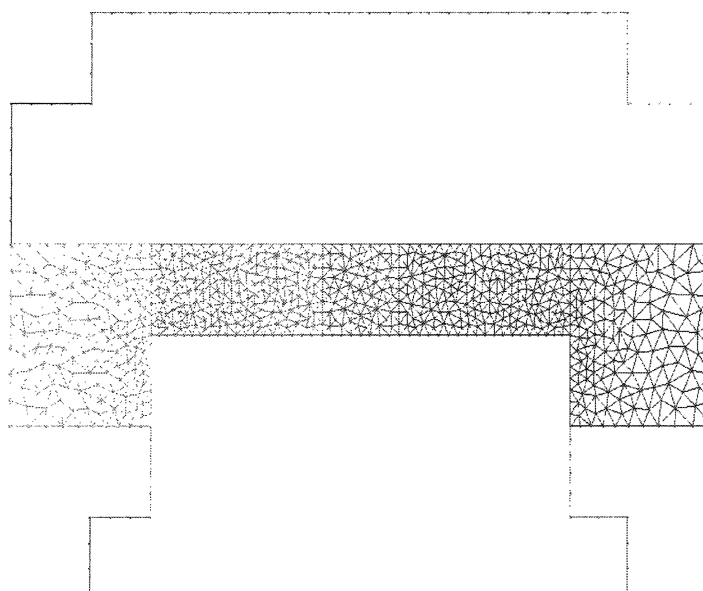


Figure 4.15: Mesh of the mold (configuration 4)

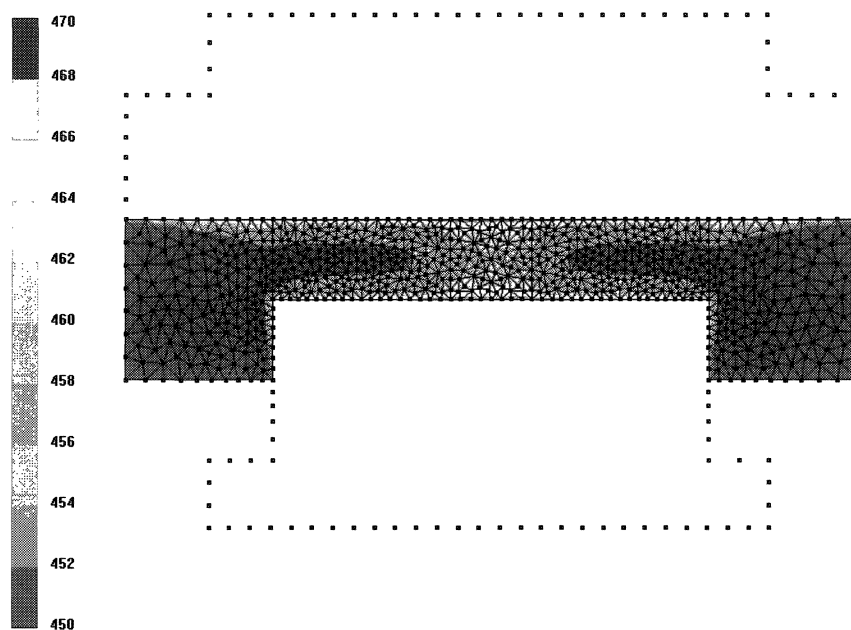


Figure 4.16: Temperature distribution in the mold after 2500 sec

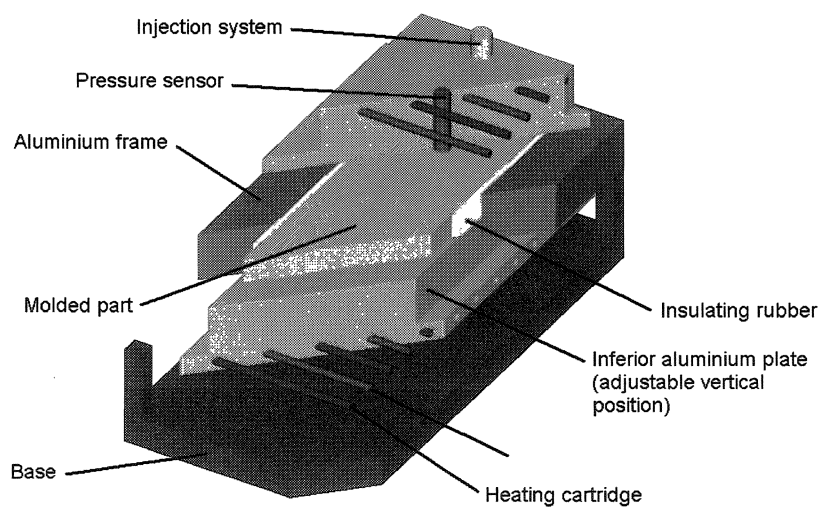


Figure 4.17: Cut view of the mold

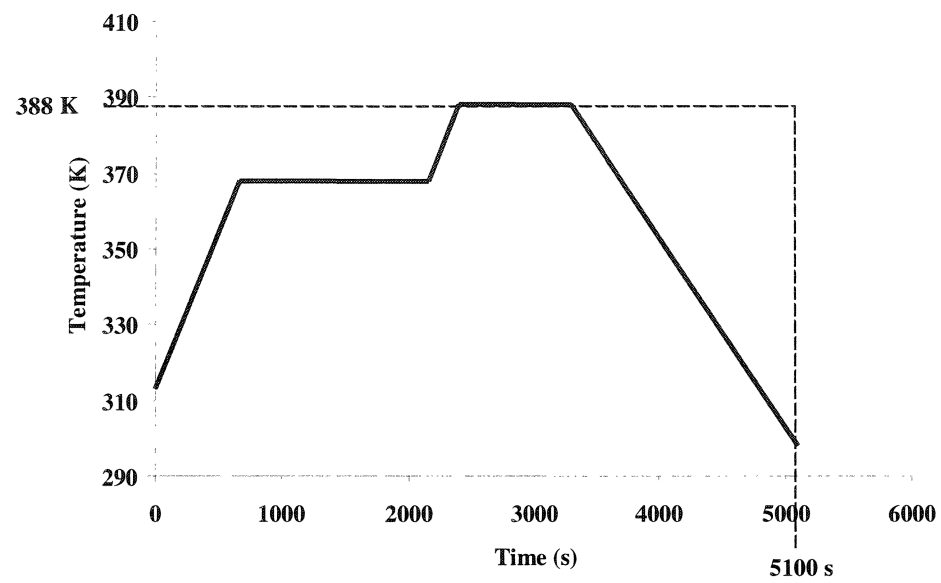


Figure 4.18: Cure and post cure heating cycle

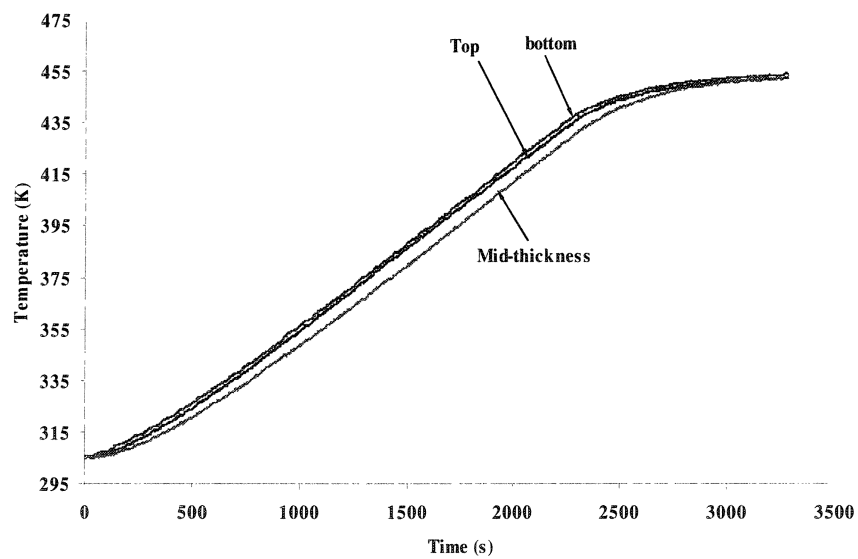


Figure 4.19: Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured composite during heating

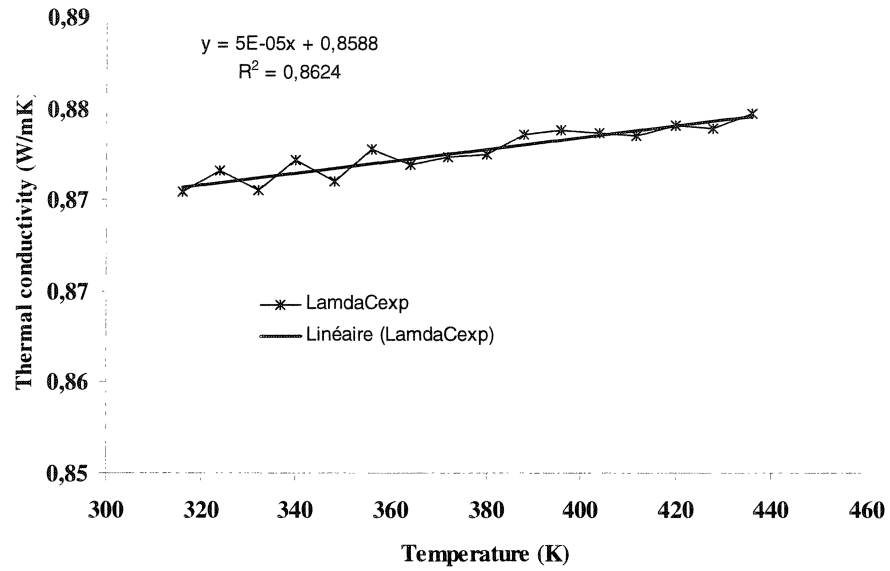


Figure 4.20: Evolution with temperature of the in-plane thermal conductivity of the cured composite

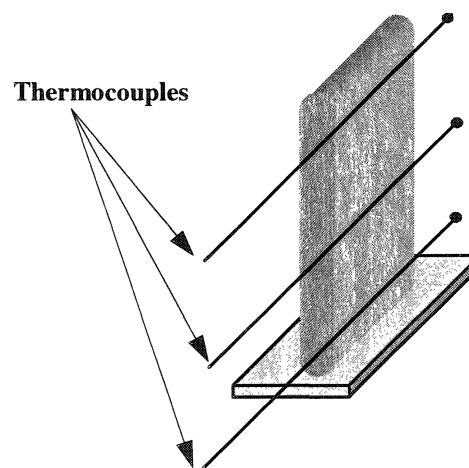


Figure 4.21: Experimental set-up designed to hold thermocouples

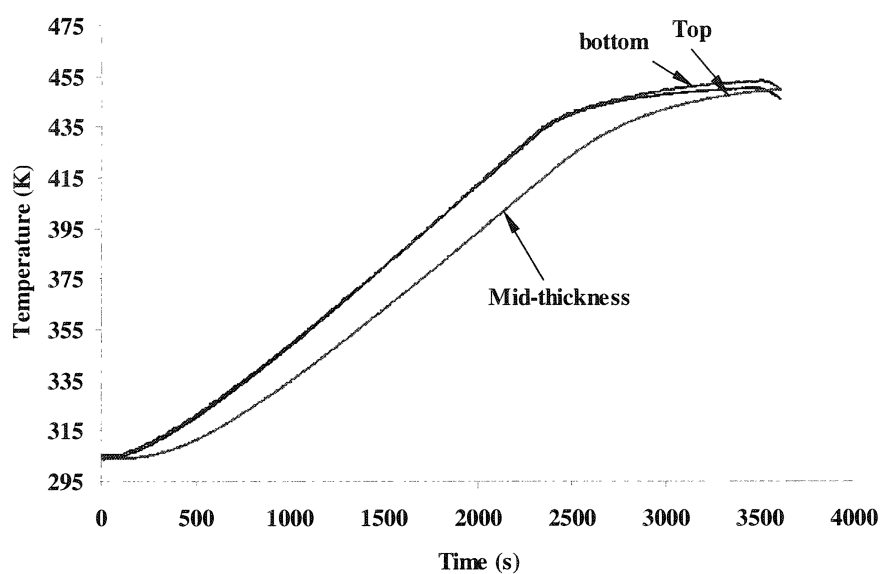


Figure 4.22: Temperature evolution of the three thermocouples through the thickness of the cured resin during heating

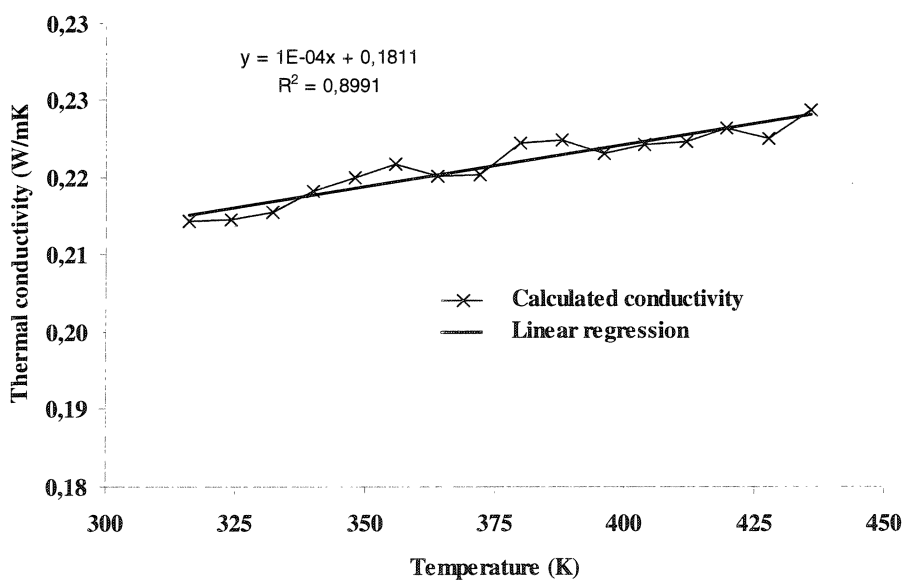


Figure 4.23: Evolution with temperature of the thermal conductivity of the cured resin

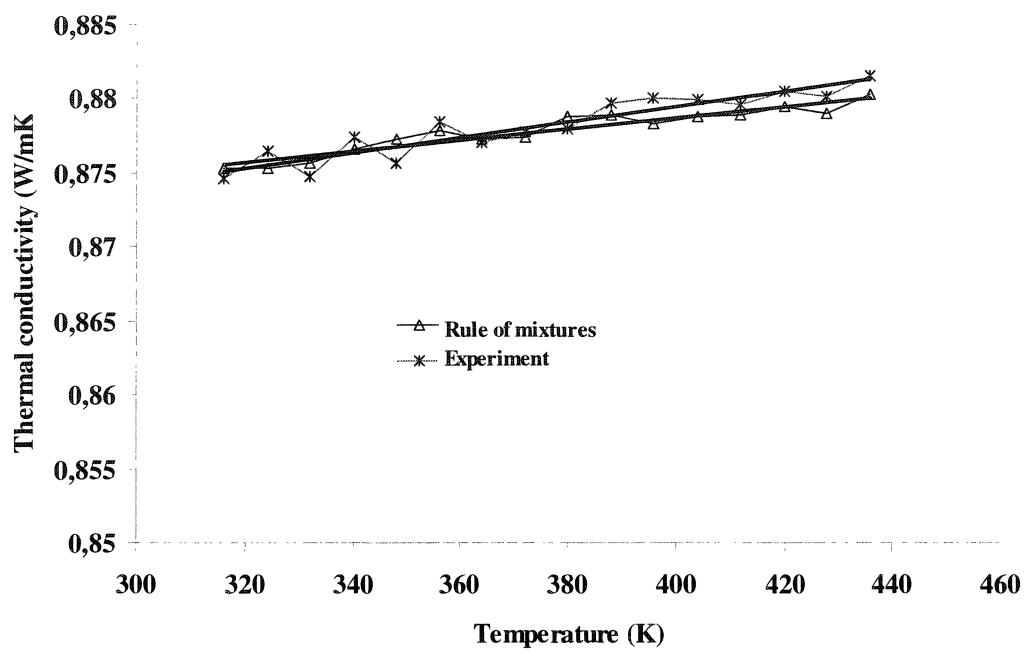


Figure 4.24: Comparison between experimental in-plane thermal conductivity of the cured composite and the one derived from the rule of mixtures

DISCUSSION GÉNÉRALE

Les conductivités thermiques transverse et longitudinale d'un matériau composite ont été déterminées par analyse inverse en effectuant des expériences sur un dispositif expérimental particulier que l'on a appelé moule thermique. L'originalité de ce travail réside dans le développement même du moule car la méthode inverse est connue et largement utilisée dans la littérature. Ce moule contrôlé thermiquement a permis de prélever facilement les températures nécessaires à l'utilisation de la méthode inverse. Pour cela on a disposé trois thermocouples dans l'épaisseur de la pièce composite.

Le positionnement des thermocouples dans la pièce s'est avéré délicat puisque que les fils des thermocouples sortent par le côté du moule, cela pouvant entraîner une fuite de la résine lors de l'injection. Il serait préférable d'envisager l'insertion des thermocouples par le plateau supérieur du moule en profitant de deux possibilités préexistantes : l'évent ou le point d'injection.

La comparaison des résultats expérimentaux avec un modèle théorique nous a amené à mesurer la conductivité thermique de la résine seule. Puisque ce problème a été résolu expérimentalement (collage des thermocouples sur une pièce placée au centre de la cavité du moule), il est possible de mesurer la conductivité thermique de n'importe quel matériau à l'état liquide ou en cours de cuisson. L'expérience avec le laiton n'a pas fourni des résultats à cause des problèmes rencontrés avec le système d'acquisition mais grâce à ce nouveau dispositif il est envisageable d'essayer avec un liquide (huile, eau..)

CONCLUSION

Ce travail s'inscrit dans le cadre d'une étude qui porte sur la validation d'un moule permettant de mesurer les conductivités thermiques transverse et longitudinale d'un matériau composite. Une étude antérieure propose un moule de forme carrée. Dans ce travail, des modifications ont été apportées pour rendre le moule multifonctionnel en ajoutant des capteurs de pression et des senseurs de température. Le dimensionnement du moule, tout en prenant en compte l'influence de ces capteurs, a été réalisé à travers une série de simulations numériques à l'aide du logiciel PAM-RTM. La conception finale assure la présence d'un transfert de chaleur unidirectionnel dans le matériau composite tel que requis par la méthode inverse lors de la prédiction des conductivités thermiques transverse et longitudinale du matériau composite.

Le choix de la méthode inverse est basé sur le fait que les méthodes classiques telles que la méthode de la plaque chaude gardée ou la méthode du fil chaud restent inappropriées pour ce type de matériau. En effet celles-ci requièrent des propriétés thermophysiques du matériau indépendantes de la température, ce qui n'est pas le cas pour la plupart des matériaux composites.

La conductivité thermique transverse a été tout d'abord déterminée par analyse inverse en prélevant les températures au sein du matériau composite à l'aide de trois thermocouples insérés dans son épaisseur. Le positionnement des thermocouples au sein du matériau composite représente un travail délicat du fait que l'épaisseur est de l'ordre de quelques centimètres (2 cm).

Afin de pouvoir comparer les résultats expérimentaux à un modèle tel que celui de Springer et Tsai qui est largement utilisé dans la littérature. Ce modèle relie les conductivités thermiques du composite à ses composantes (résine, fibres). Par

conséquent, la détermination de la conductivité thermique de la résine cuite s'imposait alors que celle des fibres est connue.

La conductivité thermique dans le plan des fibres a été ensuite étudiée. Le moule possède une cavité qui ne permet pas de réaliser des plaques épaisses (maximum 35 mm). Si les thermocouples sont insérés dans l'épaisseur du matériau composite selon la direction des fibres, le système de chauffage actuel ne permet pas d'obtenir un transfert de chaleur unidirectionnel dans cette direction. Les répercussions d'une modification du système de chauffage sur le transfert de chaleur dans le matériau composite ont alors été étudiées. Le flux de chaleur reste unidirectionnel selon la direction des fibres seulement si l'échantillon à étudier est placé entre deux éléments chauffants dans la cavité du moule. Ce qui représente un changement trop important de la conception actuelle. Une autre alternative a été de placer les fibres dans la cavité de telle manière que leur direction soit perpendiculaire à la largeur du moule. Une fois la pièce moulée, elle est coupée en gardant les thermocouples dans l'épaisseur, et est replacée verticalement dans le moule.

La mesure de la résine cuite effectuée auparavant a permis d'utiliser la loi des mélanges pour déduire la conductivité thermique longitudinale. La valeur obtenue a ensuite été comparée à celle mesurée. Les résultats montrent une très bonne concordance entre la théorie et l'expérience.

La résine à l'état cru a aussi été caractérisée en absence de catalyseur. En effet, l'existence de catalyseur dans la résine injectée fait que la réaction de polymérisation se déclenche dès que la température de cuisson est atteinte causant une création de chaleur qui affecte la température mesurée. Enfin, il serait intéressant de mesurer les conductivités thermiques transverse et longitudinale du matériau composite en fonction du taux de fibres dans la poursuite de ce travail.

RÉFÉRENCES

- [1] Giaretto V. and Torchio M.F. (2004). Two-Wire Solution for Measurement of the Thermal Conductivity and Specific Heat Capacity of Liquids: Experimental Design, *International Journal of Thermophysics*, vol. **25**, No. 3, pp. 679-699.
- [2] Wakeham W.A. and Assael M.J. (1999). Thermal Conductivity Measurement, *The Measurement, Instrumentation and Sensors Handbook*, Webster J. G. editor. CRC Press LLC.
- [3] Laurent J.P. (1991). An Estimation Model for The Dry Thermal Conductivity of Autoclaved Aerated Concrete, *Materials and Structures*, **24** (141), pp. 221-226.
- [4] Oms J.L. (1991). Identification of Thermal Parameters of Reactive and Deformable Porous Medium – Gas – Solid Chemical Heat-Pumps Application, *Revue Générale de Thermique*, **30** (354-55), pp. 394-400.
- [5] Degiovanni A., Batsale J.C., Maillet D. (1996). Mesure de la Diffusivité Longitudinale de Matériaux Anisotropes: Panorama des Techniques Développées au LEMTA, *Revue Générale de Thermique*, **35**, pp. 141-147.
- [6] Jarny, Y. (2003). The Adjoint Method to Compute the Numerical Solutions of Inverse Problems, *Inverse Engineering Handbook*. Woodbury K.A. editor. CRC Press LLC.

- [7] Mallick P.K. (1993). Fiber-reinforced composites: materials, manufacturing, and design. 2nd Ed. *New York*: Marcel Dekker. p.566.
- [8] Lebrun G., Gauvin G, Gauvin R., Kendall K.N. (1996). Experimental investigation of resin temperature and pressure during filling and curing in flat steel mould, *Composites Part A*, **27** (5), pp. 347-355.
- [9] Trochu F., Boudreault J.F., Gao D.M., Gauvin R. (1995). Three-Dimensional Flow Simulations for the Resin Transfer Molding Process, *Materials and manufacturing processes*, **10** (1), pp. 21-26.
- [10] Trochu F., Gauvin R., Gao D.M. (1993). Numerical Analysis of the Resin Transfer Molding Process by the Finite Element Method, *Advances in Polymer Technology*, **12**(4), pp. 329-342.
- [11] Ferland P., Guittard D., Trochu F. (1996) Concurrent Methods for Permeability Measurement in Resin Transfer Molding, *polymer composites*, **17**(1), pp. 149-158.
- [12] Bailleul J.L. (1997). Optimisation du Cycle de Cuisson de Pièces en Matériau Composite. Application à un Préimprégné Résine Epoxy / Fibre de Verre. *Thèse de Doctorat*, Université de Nantes, Isitem.
- [13] Pitchumani R., Yao S.C. (1992). Evaluation of Transverse Thermal Diffusivity of Unidirectional Fiber-Reinforced Composites, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **35**(9), pp. 2185-2194.
- [14] Sobotka V. (2001). Détermination des Paramètres Thermophysiques et Cinétiques d'une Résine Polyester Insaturée, *rapport de stage de fin d'études*, Ecole Polytechnique Montréal.

- [15] Van Ekeren P.J., Ionescu L.D., Mathot V.B.F. and van Miltenburg J.C. (2002). Specific Heat Capacities and Thermal Properties of a Homogeneous ethylene-1-butene Copolymer by Adiabatic Calorimetry, *Thermochimica Acta*, **391**, pp. 185-196.
- [16] Riopel S. (1999). Etude Expérimentale de la Cuisson d'un Composite Unidirectionnel Verre/Polyester de Grande Epaisseur, *mémoire de maîtrise*, Ecole Polytechnique de Montréal.
- [17] Yousefi-Moshirabad A. (1996). Cure Analysis of Promoted Polyester and Vinylester Reinforced Composites and Heat Transfer in RTM Molds, *thèse de doctorat*, École polytechnique de Montréal, département de Génie Chimique.
- [18] Salla J.M., Ramis X. (1994). A kinetic Study of Three Catalytic Systems on the Curing of an Unsaturated Polyester Resin, *Journal of applied polymer science*, **51**, pp. 453-462.
- [19] Ramis X., Salla J.M. (1999). Effect of the Initiator Content and Temperature on the Curing of an Unsaturated Polyester Resin, *Journal of polymer science part B polymer physics*, **37**, pp. 751-768.
- [20] Guyonvarch G. (1995). Analyse et Optimisation des Transferts Thermiques Couplés Lors du Moulage des Matériaux Composites par Transfert de Résine (procédé RTM). Application à la Pièce Automobile d'Aspect en Polyester / Fibre de Verre. *Thèse de doctorat*, Université de Nantes, Isitem.
- [21] Kamal M.R., Sourour S. (1973). Kinetics and thermal characterization of a thermoset cure, *Polymer engineering and science*, **13**(1).

- [22] Lem K.W., Han C.D. Thermokinetics of Unsaturated Polyester and Vinyl Ester Resins, *Polymer Engineering and Science*, **24**, pp. 175-184.
- [23] Bauer T.H. (1993). A General Analytical Approach Toward the Thermal Conductivity of Porous Media, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **36** (17), pp. 4181-4191.
- [24] Tai H. (1996). Equivalent Thermal Conductivity of Two- and Three- Dimensional Orthogonally Fiber-Reinforced Composites in One-Dimensional Heat Flow, *Journal of composites technology and research*, **18**(3), pp 221-227.
- [25] Farmer J.D., Covert E. (1996). Thermal Conductivity of a Thermosetting Advanced Composite During its Cure, *journal of thermophysics and heat transfer*, **10**(3).
- [26] Tervola P. (1989). A Method to Determine the Thermal Conductivity From Measured Temperature Profiles, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **32**(8), pp 1425-1430.
- [27] Incropera F.P., De Witt D.P. Fundamentals of Heat and Mass Transfer, fifth edition, Wiley Ed.
- [28] Degiovanni A., Détermination des Propriétés Thermophysiques : Conductivité et Diffusivité, Métrologie thermique et techniques inverses, _centre CNRS d'Aussois, vol. 1.
- [29] Huang C.H., Ozisik M.N. (1991). Direct integration Approach for Simultaneously Estimang Temperature Dependent Thermal Conductivity and Heat Capacity, *numerical heat transfer, part A*, **20**, pp. 95-110.

- [30] Huang C.H., Han J.-Y. (1995). An Inverse Problem in Simultaneously Measuring Temperature-Dependent Thermal Conductivity and Heat Capacity, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **38**(18), pp. 3433-3441.
- [31] Chen H.T., Lin J.Y. (1998). Simultaneous Estimations of Temperature-Dependent Thermal Conductivity and Heat Capacity, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **41**(14), pp. 2237-2244.
- [32] Jauffres D. (2002). Conception d'une Presse Expérimentale de Moulage de Pièces Composites par le Procédé RTM Dédiée à des Mesures de Conductivité Thermique, *rapport de stage, INSA de Lyon, École Polytechnique de Montréal*.
- [33] Menge H. (2003). Détermination des Conductivités Thermiques et des Paramètres Cinétiques d'un Matériau Composite, *mémoire de maîtrise, Ecole Polytechnique Montréal*.

ANNEXE I

CALCUL DU TAUX DE FIBRES

Le taux des fibres utilisé dans les expériences peut être déterminé à l'aide d'une pyrolyse effectuée sur un échantillon.

Le taux volumique est donné par la relation suivante :

$$v_f = \frac{\text{masse des fibres} \times \text{masse volumique du composite}}{\text{masse du composite} \times \text{masse volumique des fibres}} \times 100 \quad (\text{I.1})$$

L'échantillon sous forme d'un petit rectangle a les dimensions suivantes : 35 mm de longueur, 30 mm de largeur et 20 mm d'épaisseur.

La masse de l'échantillon (avant la pyrolyse) est égale à 43,5 g. l'échantillon est ensuite chauffé dans un four pour évaporer totalement la résine. La masse des fibres résultantes est égale à 36,81 g. $m_f = 36,81 \text{ g}$

La masse volumique de l'échantillon peut être déterminée en pesant l'échantillon dans l'air, puis dans l'eau et en appliquant la relation suivante :

$$\rho_{\text{comp}} = \left(\frac{\text{masse de l'échantillon dans l'air}}{\text{masse de l'échantillon dans l'air} - \text{masse dans l'eau} + \text{masse du fil}} \right) \times 100 \quad (\text{I.2})$$

La masse de l'échantillon dans l'air est égale à 43,5 g, et celle dans l'eau est égale à 20,015 g, la masse du fil immergé est égale à 0,16 g. D'où :

$$\rho_c = \left(\frac{43,5}{43,5 - 20,015 + 0,16} \right) \times 997,5 = 1835 \text{ Kg/m}^3 \quad (\text{I.3})$$

La relation (I.1) donne :

$$v_f = \frac{36,81}{43,50} \times \frac{1835}{2550} \times 100 = 61 \% \quad (\text{I.4})$$

Taux de fibres (guidelines)

Le taux de fibres peut être aussi calculée à l'aide la relation suivante :

$$v_f = \frac{\rho_{\text{sur}} \times n}{\rho_{\text{vol}} \times h} \times 100 \quad (\text{I.5})$$

où ρ_{sur} est densité surfacique du tissu, n le nombre de tissus, ρ_{vol} la densité volumique du tissu et h l'épaisseur de la cavité.

La masse du tissu : $m = 10,61 \text{ g}$

Les dimension du tissu : longueur $L = 0.28 \text{ m}$, largeur $W = 0.087 \text{ m}$

D'où sa surface $S = L \times W = 0,28 \times 0.087 = 0,0243 \text{ m}^2$

La densité surfacique est donc : $\rho_{\text{sur}} = \frac{m}{S} = \frac{10,61}{0,0243} = 435,55 \text{ g/m}^2$

La densité volumique : $\rho_{\text{vol}} = 2,55.10^6 \text{ g/m}^3$

Le nombre des couches : $n = 72$ couches et l'épaisseur de la cavité du moule :

$h = 0,02 \text{ m}$. D'où le taux volumique donné par la relation (I.5) :

$$v_f = \frac{435,55 \times 72}{2,55 \cdot 10^6 \times 0.02} \times 100 = 61 \%$$

ANNEXE II

PRÉPARATION D'UN JOINT SILICONE

Durant les expériences, un joint en silicone est ajouté dans la cavité du moule entourant la plaque composite. Ce joint a été fabriqué de la manière suivante : une plaque en PVC est d'abord préparée. Cette plaque a l'épaisseur du moule. Elle est collée au centre, laissant un vide de 1 cm avec les bords de la cavité.

Le silicone utilisé est de type DAPCO[®] 40. C'est une résine couramment utilisée pour fabriquer des joints à haute pression. La formulation de ce produit est donnée dans le Tableau II.1. :

	Masse	Volume
Part A	100	100
Part B	6	6,6

Tableau II.1 - Taux de mélange de silicone

Le mélange DAPCO[®] 40 doit être homogène afin de lui conférer les propriétés optimales. Le mélange est ensuite dégazé.

Une couche mince et uniforme d'agent démoulant doit être déposée pour faciliter le démoulage. On utilise pour cela du DAPCO 10080.

Le mélange DAPCO[®] 40 est ensuite coulé entre le moule et la plaque PVC. On le laisse alors pendant 24 heures à température ambiante. Il est par la suite chauffé à 50C pendant

4 heures. Enfin, le joint est démoulé et est chauffé à 180 C pendant quatre heures. Le cycle de chauffage est donné par la Figure II.1.

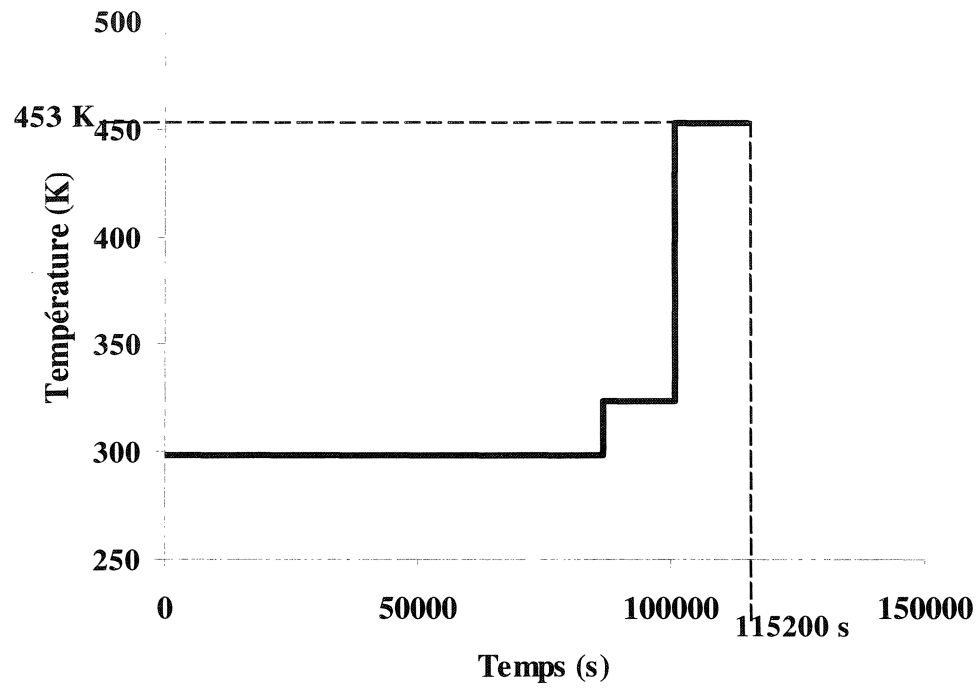


Figure II.1 - Cycle de cuisson de silicone

ANNEXE III

DONNEES EXPERIMENTALES

Nous présentons ici les résultats du code de calcul avec la méthode inverse pour la conductivité thermique. Les données expérimentales de la température ne sont pas cités dans des annexes car les fichiers sont volumineux (plus que 35000 lignes).

CONDUCTIVITE THERMIQUE TRANSVERSE DU COMPOSITE CUIT :

Température (K)	Conductivité thermique (W/mK)
316	0,52918
324	0,517446
332	0,522744
340	0,5319
348	0,524226
356	0,529261
364	0,536767
372	0,530478
380	0,543104
388	0,544187
396	0,548985
404	0,543845
412	0,552046
420	0,566171
428	0,559667
436	0,548765

CONDUCTIVITE THERMIQUE DE LA RESINE CUITE :

Température (K)	Conductivité thermique (W/mK)
316	0,211014
324	0,2111
332	0,21192
340	0,214365
348	0,216029
356	0,217641
364	0,216211
372	0,216411
380	0,219965
388	0,220319
396	0,21881
404	0,219925
412	0,220265
420	0,221729
428	0,220562
436	0,223902

CONDUCTIVITE THERMIQUE LONGITUDINALE DU COMPOSITE CUIT :

Température (K)	Conductivité thermique (W/mK)
316	0,87469
324	0,87650
332	0,87479
340	0,87740
348	0,87563
356	0,87840
364	0,87700
372	0,87773
380	0,87800
388	0,87970
396	0,88010
404	0,87990
412	0,87960
420	0,88050
428	0,88020
436	0,88160

**COMPARAISON ENTRE LES DONNEES EXPERIMENTALES DE LA
CONDUCTIVITE THERMIQUE TRANSVERSE ET LE MODELE THEORIQUE**

Température (K)	Conductivité thermique (W/mK) (MODELE)	Conductivité thermique (W/mK) (EXPERIENCE)	Différences
			% $\left \frac{\text{modèle} - \text{expérience}}{\text{modèle}} \right \times 100$
316	0,54210483	0,52918	2,38419311
324	0,54224546	0,517446	4,57347426
332	0,54358439	0,522744	3,8338826
340	0,54755571	0,5319	2,85919997
348	0,55024069	0,524226	4,7278747
356	0,55282816	0,529261	4,26301796
364	0,55053349	0,536767	2,50057309
372	0,55085506	0,530478	3,69916841
380	0,55653518	0,543104	2,41335753
388	0,55709745	0,544187	2,31744983
396	0,55469626	0,548985	1,0296197
404	0,55647161	0,543845	2,26904849
412	0,55701172	0,552046	0,89149375
420	0,55933077	0,566171	1,22293181
428	0,55748305	0,559667	0,39175101
436	0,56275321	0,548765	2,48567461

**COMPARAISON ENTRE LES DONNEES EXPERIMENTALES DE LA
CONDUCTIVITE THERMIQUE LONGITUDINALE ET LE MODELE THEORIQUE**

Température (K)	Conductivité thermique (W/mK) (MODELE)	Conductivité thermique (W/mK) (EXPERIENCE)	Différences
			% $\left \frac{\text{modèle} - \text{expérience}}{\text{modèle}} \right \times 100$
316	0,87529546	0,87469	0,06917207
324	0,875329	0,87650	0,13377827
332	0,8756488	0,87479	0,09830425
340	0,87660235	0,87740	0,09099337
348	0,87725131	0,87563	0,18538701
356	0,87787999	0,87840	0,05923475
364	0,87732229	0,87700	0,03673564
372	0,87740029	0,87773	0,03757806
380	0,87878635	0,87800	0,08948136
388	0,87892441	0,87970	0,08824308
396	0,8783359	0,88010	0,20084571
404	0,87877075	0,87990	0,12850337
412	0,87890335	0,87960	0,07926355
420	0,87947431	0,88050	0,11662535
428	0,87901918	0,88020	0,13433382
436	0,88032178	0,88160	0,14519918

ANNEXE IV

ESSAIS AVEC LE LAITON

Dans l'annexe II, nous avons présenté le protocole expérimental pour fabriquer un joint de silicone. Ce joint a été placé dans la cavité du moule entourant la pièce composite. Le rôle de ce joint est d'isoler les bords de la pièce composite du cadre du moule et pour permettre un transfert de chaleur préférentiel dans cette pièce. Pendant l'expérience avec le laiton, le joint silicone a été également placé dans la cavité du moule dans le même but décrit auparavant. Les dimensions de deux plaques de laiton sont données sur la Figure III.1.

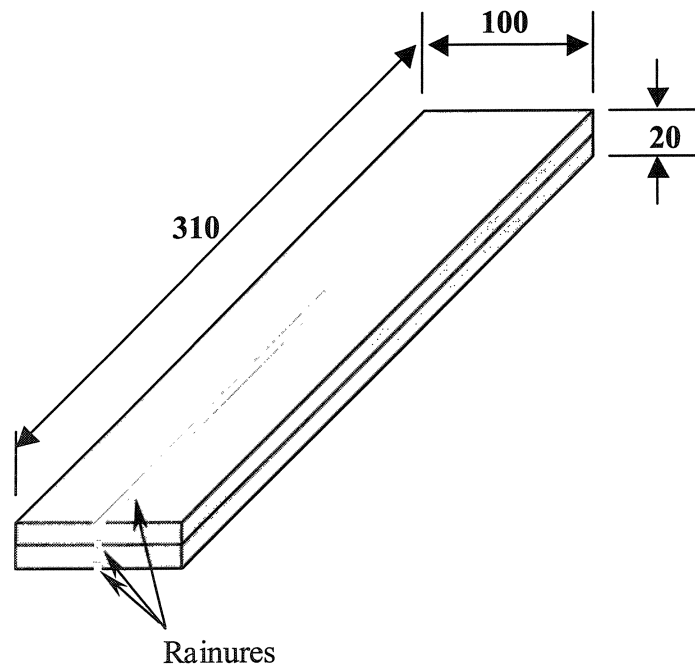


Figure III. 1 - Dimensions de deux plaques de laiton

Les températures enregistrées par les trois thermocouples sont présentées sur la Figure III.2. Le thermocouple au centre des plaques ainsi que celui placé entre la plaque supérieure et le plateau supérieur du moule enregistrent la même température puisque ces deux thermocouples se situent sur la même plaque.

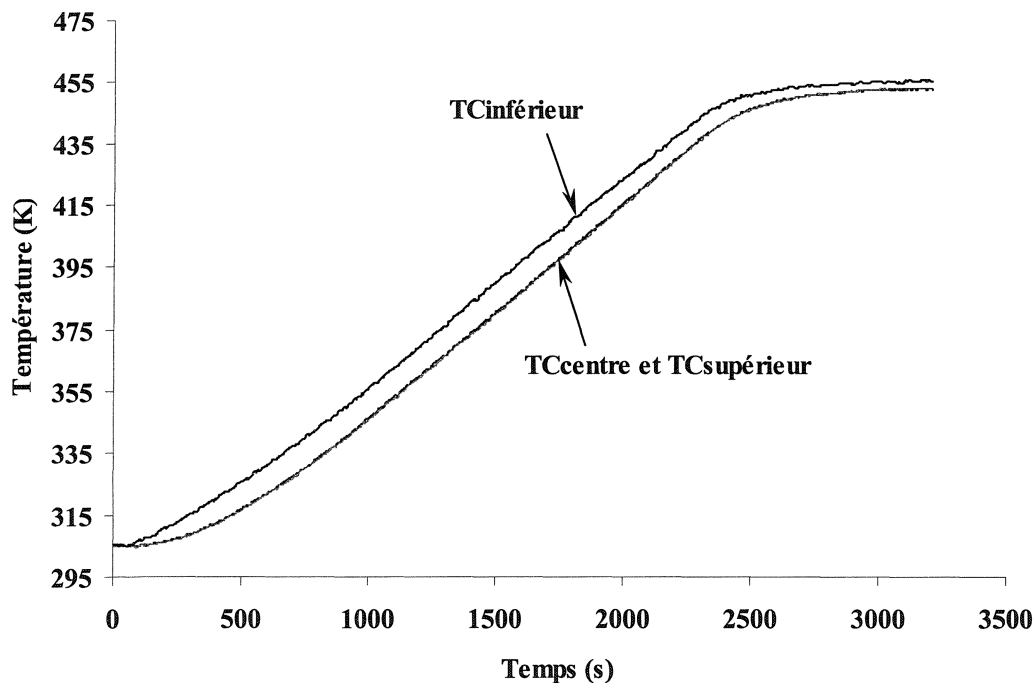


Figure III. 2 - Evolution de la température en fonction du temps des trois thermocouples placés dans l'épaisseur des plaque de laiton

Pour diminuer la résistance de contact entre les plaques, une couche de silicone a été déposée sur les surfaces de deux plaques de laiton ainsi que sur les surfaces du plateau supérieur et inférieur du moule. Les températures enregistrées par les trois thermocouples sont données sur la Figure IV.1. les deux thermocouples qui se situent sur la même plaque enregistre toujours les mêmes

valeurs de la température et la résistance de contact n'avait pas d'influence sur l'évolution de la température en fonction du temps.

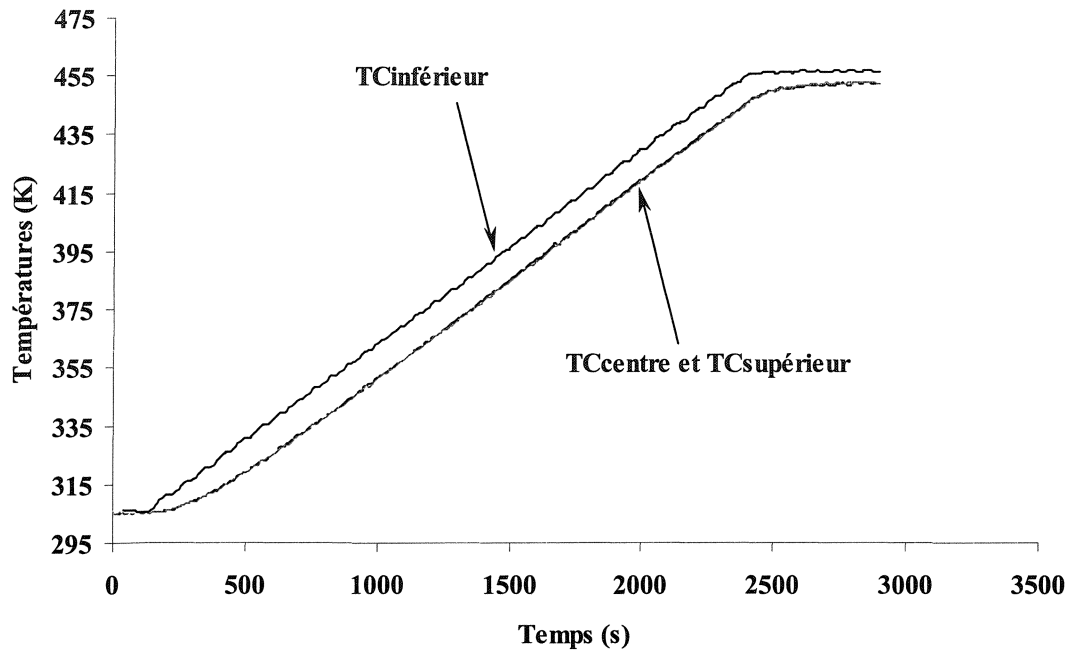


Figure III. 3 - Evolution de la température en fonction du temps des trois thermocouples placés dans l'épaisseur des plaque de laiton où une couche de silicone est déposée

ANNEXE V

INSTRUMENTATION

CONTROL DE L'ÉPAISSEUR DE LA CAVITE

Indicateur analogique d'épaisseur Figure V.I.

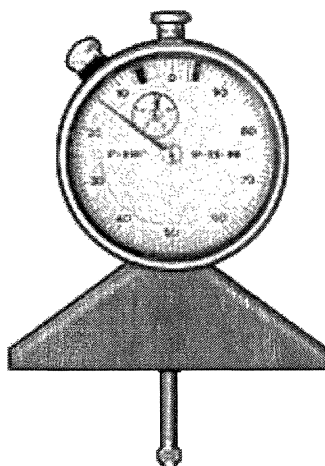


Figure V.1 – Indicateur d'épaisseur

CONTROLE DE CHAUFFAGE ET DE REFROIDISSEMENT

Système de chauffage contrôlé par *Davis Control system*,

Contrôleurs programmables	Cal 9500P
---------------------------	-----------

Lecteurs	Cal3300
----------	---------

Logiciel	CALgraphix
----------	------------

ACQUISITION DES DONNEES

Logiciel	Labview
Nombre possible de thermocouples	7
Boîtier d'acquisition	NI SCXI-1000

THERMOCOUPLES

Nombre de thermocouples	3
Type	K